



# Développement et modélisation d'un spectromètre multidétecteur Ge/Si pour la détection des ultra-traces de produits de fission dans l'environnement

Antoine Cagniant

## ► To cite this version:

Antoine Cagniant. Développement et modélisation d'un spectromètre multidétecteur Ge/Si pour la détection des ultra-traces de produits de fission dans l'environnement. Physique Quantique [quant-ph]. Université Pierre et Marie Curie - Paris VI, 2015. Français. NNT : 2015PA066151 . tel-01297831

**HAL Id: tel-01297831**

**<https://theses.hal.science/tel-01297831>**

Submitted on 5 Apr 2016

**HAL** is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.



# THÈSE DE DOCTORAT DE L'UNIVERSITÉ PIERRE ET MARIE CURIE

Spécialité

**Physique**

(ED 564 - Physique en Île-de-France)

Préparée au LABORATOIRE DE RADIOANALYSE BAS NIVEAU  
CEA, DAM, DIF, F-91297 ARPAJON, FRANCE

Présentée par

**Antoine CAGNIANT**

Pour obtenir le grade de

DOCTEUR de l'UNIVERSITÉ PIERRE ET MARIE CURIE

Sujet de la thèse :

**Développement et modélisation d'un spectromètre  
multidécteur Ge/Si pour la détection des ultra-traces de  
produits de fission dans l'environnement**

**Soutenance prévue le 03 avril 2015**

devant le jury composé de :

M.	CASSETTE	Philippe	Rapporteur	CEA/DRT/LNHB
M.	JUNG	Jean-Marc	Rapporteur	Univ. Strasbourg
M.	AUPIAIS	Jean	Directeur de thèse	CEA/DAM/DIF
M.	BRUGGEMAN	Michel	Examineur	SCK-CEN
M.	GURRIARAN	Rodolfo	Examineur	IRSN
M.	TAVERNET	Jean-Paul	Examineur	Univ. Paris 6
Mme.	NAHUM	Carole	Invitée	DGA/MRIS





# Table des matières

Résumé	iii
Table des figures	xiv
Liste des tableaux	xviii
Glossaire et notations	xix
Introduction	1
<b>1 Généralités</b>	<b>7</b>
1.1 Radioactivité et particules . . . . .	8
1.2 La mesure de la radioactivité . . . . .	11
1.2.1 Les détecteurs . . . . .	11
1.2.2 Les mesures directes ou en coïncidences . . . . .	12
1.2.3 Les systèmes d'acquisition . . . . .	13
1.3 Les simulations Monte-Carlo . . . . .	13
1.4 Le bruit de fond en mesure de radioactivité . . . . .	14
1.4.1 Quantification du bruit de fond . . . . .	16
1.4.2 Composantes environnementales du bruit de fond . . . . .	22
1.4.3 Blindage . . . . .	28
1.5 Mesures de radioactivité dans l'environnement . . . . .	37
1.5.1 Les laboratoires de mesure de traces de radioactivité . . . . .	40
1.5.2 Techniques avancées de mesure de radioactivité . . . . .	40
1.5.3 La détection de radionucléides dans le cadre du TICE . . . . .	42
1.6 Problématique . . . . .	48
<b>2 Développement d'un spectromètre à très bas bruit de fond</b>	<b>51</b>
2.1 Choix des détecteurs . . . . .	52
2.1.1 Détecteurs au germanium . . . . .	52
2.1.2 Le détecteur PIPSBox . . . . .	55
2.1.3 Le blindage du spectromètre GAMMA <sup>3</sup> . . . . .	56
2.2 Le système d'acquisition numérique . . . . .	58
2.2.1 Fonctionnement . . . . .	58
2.2.2 Réglages . . . . .	60
2.3 Rendements de détection des détecteurs HPGe . . . . .	61

2.4	Étude du bruit de fond . . . . .	68
2.4.1	Étude du comptage intégral . . . . .	68
2.4.2	Pics caractéristiques du bruit de fond . . . . .	70
2.4.3	Interactions avec les neutrons . . . . .	74
2.4.4	Interférences liées aux descendants du radon . . . . .	76
2.5	Gains en Activité Minimale Détectable ( <i>AMD</i> ) . . . . .	77
2.5.1	En cellule de mesure gaz SPALAX . . . . .	77
2.5.2	Géométrie RASA . . . . .	79
2.5.3	Géométrie SG500 . . . . .	80
2.5.4	Gains en <i>AMD</i> : bilan . . . . .	80
2.6	Étude des détecteurs au silicium . . . . .	81
2.6.1	Rendements de détection pour les électrons . . . . .	82
2.6.2	Rendements de détection pour les photons . . . . .	86
2.6.3	Bilan . . . . .	87
<b>3</b>	<b>Spectrométrie en coïncidences haute résolution</b>	<b>89</b>
3.1	Introduction et généralités . . . . .	91
3.2	Spectrométrie photon/électron des radionucléides . . . . .	92
3.2.1	Principe de mesure et simulation . . . . .	92
3.2.2	Émissions de particules . . . . .	93
3.2.3	Détermination des rendements de détection . . . . .	103
3.2.4	Estimation du bruit de fond . . . . .	105
3.2.5	Application : cas de DPRK 2013 . . . . .	119
3.3	Mesures de coïncidences photon/photon . . . . .	122
3.3.1	Radionucléides concernés . . . . .	122
3.3.2	Mesure de bruit de fond . . . . .	122
3.3.3	Étude de cas : le $^{134}\text{Cs}$ . . . . .	126
3.4	Autres mesures de coïncidences : études et applications . . . . .	132
3.4.1	À trois photons : le $^{110\text{m}}\text{Ag}$ . . . . .	133
3.4.2	Coïncidences X/ $\gamma$ . . . . .	135
3.4.3	Coïncidences électron/électron . . . . .	137
	<b>Conclusion et perspectives</b>	<b>141</b>
	<b>Publications</b>	<b>145</b>
	<b>Bibliographie</b>	<b>157</b>
	<b>A Radiographie du détecteur Porthos</b>	<b>157</b>
	<b>B Radiographie du détecteur Athos</b>	<b>159</b>
	<b>C Radiographie du détecteur Aramis</b>	<b>161</b>
	<b>D Publications</b>	<b>163</b>

## Résumé

Dans le cadre de la vérification du Traité d'Interdiction Complète des Essais nucléaires (TICE), la mesure des traces de produits de fission et d'activation dans l'environnement est fondamentale. Ces mesures sont des indicateurs indéniables du caractère nucléaire d'une explosion. Ainsi elles se doivent d'être extrêmement fiables tout en étant très sensibles.

Le Laboratoire de Radio-analyse Bas Niveau du CEA/DAM-Ile de France s'est équipé d'un nouveau spectromètre de surface dédié à la mesure des traces de produits de fission et d'activation. Ce spectromètre, baptisé GAMMA<sup>3</sup>, est équipé de trois détecteurs au germanium et d'un blindage optimisé. Ce blindage permet de réduire le taux de comptage intégral de bruit de fond radiologique à  $3,1 \text{ min}^{-1}$  (sur la gamme 20-2500 keV d'énergie photon) contre 40 à  $50 \text{ min}^{-1}$  pour un blindage classique. L'utilisation de trois détecteurs au germanium permet d'effectuer des mesures à haute résolution en énergie et à haut rendement de détection. Les activités minimales détectables des produits de fission et d'activation pour ce spectromètre sont inégalées (pour un laboratoire de surface). On obtient par exemple une activité minimale détectable en américium-241 pour une acquisition de 480000 s de 0,92 mBq lors d'une mesure de filtre de prélèvement des particules atmosphériques compressé ou de 4 mBq pour une mesure d'échantillon d'eau de grand volume (500 mL).

Le prélèvement et la mesure des traces de gaz nobles radioactifs dispersés dans l'atmosphère suite à un essai nucléaire nécessitent un traitement particulier. Afin d'améliorer la fiabilité et la précision de ces mesures, une cellule de mesure de gaz a été équipée de deux détecteurs au silicium. Couplée à un détecteur au germanium, cette cellule (baptisé détecteur PIPSbox) permet d'effectuer des mesures en coïncidence photon/électron à haute résolution en énergie. Le taux de comptage intégral du bruit de fond en mode coïncidence associé à ces mesures est très bas, avec environ  $3,6 \cdot 10^{-2} \text{ min}^{-1}$  (sur la gamme 20-2500 keV d'énergie photon et 55-1000 keV d'énergie électron). Les interférences entre radio-isotopes du xénon lors d'une mesure de coïncidences photon/électron ont aussi été étudiées. Il est ainsi montré que la configuration HPGe/PIPSbox permet d'obtenir des performances de mesure inégalées de traces de radio-isotopes du xénon.

Des mesures de coïncidences photon/photon sont présentées. Ces études montrent le gain spectroscopique apporté par ces coïncidences par rapport aux techniques de spectrométrie d'émission  $\gamma$  directe. On observe en particulier une très forte amélioration du rapport signal sur bruit. Néanmoins, les rendements de détection associés à ces mesures sont faibles. Ce n'est donc que dans le cas où l'échantillon est très actif ou pour certain radionucléides qu'elles peuvent être intéressantes.



# Table des figures

1	Schéma chronologique des essais nucléaires conduits sur terre (en surface, extra-atmosphérique, sous-marin ou souterrain) entre 1945 et 1998. Figure extraite de Wikipedia (2006). . . . .	1
2	Système de Surveillance International (SSI, IMS en anglais) du TICE. Source <a href="http://www.ctbto.org">www.ctbto.org</a> . . . . .	2
3	Station de prélèvement et de mesure des gaz nobles radioactifs et des particules atmosphériques FRP30 et FRX30 (de type SPALAX, installée sur l'archipel des Kerguelen). . . . .	4
4	Schéma illustrant la création et la dispersion dans l'atmosphère d'un panache de gaz nobles radioactifs suite à une explosion nucléaire souterraine. Source : <a href="http://www.ctbto.org">www.ctbto.org</a> . . . . .	4
1.1	Schéma de décroissance du $^{60}\text{Co}$ , selon Chisté <i>et al.</i> (2014). . . . .	9
1.2	Schéma d'un réarrangement électronique de couche K. Les émissions de photon K-X sont regroupées en trois catégories : $K\alpha$ (correspondant aux raies atomiques $K\alpha_1$ et $K\alpha_2$ ), $K\beta'_1$ (correspondant aux raies atomiques $K\beta_1$ , $K\beta_3$ et $K\beta_5$ ) et $K\beta'_2$ (correspondant aux raies atomiques $K\beta_2$ et $K\beta_4$ ). Une émission d'électron Auger K est représentée lorsque l'électron éjecté provient de la couche N, mais ces émissions existent aussi pour des électrons éjectés des couches L ou M. . . . .	10
1.3	Trois histogrammes de mesures d'émission $\gamma$ sur un spectromètre HPGe. 1. : mesure d'un étalon de $^{137}\text{Cs}$ pendant 55000 s. 2. : mesure d'un échantillon faiblement actif en $^{137}\text{Cs}$ pendant 250000 s. 3. : mesure d'un bruit de fond pendant 260000 s. La zone ombragée bleue correspond à la région d'intérêt ( <i>ROI</i> ) du $^{137}\text{Cs}$ . Dans cette <i>ROI</i> : le comptage est très largement dominé par des événements attribuables au $^{137}\text{Cs}$ (i.e. $C \approx N$ ) lors de la mesure d'un étalon (histogramme 1), le comptage est attribuable uniquement à des événements de bruit de fond radioactif (i.e. $C = B$ ) lors d'une mesure de bruit de fond (histogramme 3). Enfin, le comptage est conjointement attribuable aux événements de bruit de fond et à l'échantillon lors de la mesure d'un échantillon faiblement actif (histogramme 2). . . . .	15
1.4	Représentation des fonctions de distribution du comptage net ( $P_D(X = C_{net})$ ) dans une <i>ROI</i> donnée, dans le cas où : (i) courbe bleu, aucune radioactivité n'est détectable dans la <i>ROI</i> (dans ce cas $\overline{C_{net}} = 0$ et $\overline{B} = 80$ ), et (ii) courbe rouge, une radioactivité détectable dans la <i>ROI</i> est présente (mais à la limite de détection de risque $\beta$ , ainsi $\overline{C_{net}} = L_D = 10$ et $\overline{B} = 80$ ). . . . .	18

1.5	Débit de fluence en fonction de la profondeur des flux : secondaire de muons cosmiques, secondaire et tertiaire de neutrons cosmiques, et de neutrons provenant des fissions spontanées naturelles ou produit par réaction ( $\alpha, n$ ) (figure tirée de Heusser (1995)). . . . .	25
1.6	Simulations Monte-Carlo du bruit de fond induit par les muons cosmiques dans un détecteur au germanium en fonction de la composition de son blindage. Les épaisseurs de chacun des blindages sont normalisées à une épaisseur de 15 cm de plomb. Ces épaisseurs sont donc de 63,1 cm, 37,8 cm, 21,6 cm, 19 cm, 23,3 cm et 15 cm pour des blindages constitués respectivement de Al, Ti, Fe, Cu, Sn et Pb. L'encart en haut à droite de la figure donne la valeur maximale de chacun des continua en fonction du numéro atomique des matériaux composant les blindages. Cette figure est extraite de Vojtyla (1996b). . . . .	31
1.7	Simulation sous GEANT4 des rendements de production de neutrons tertiaire (en neutrons/muon/(g/cm <sup>2</sup> )) suite à la traversée d'un flux de muons de 280 GeV pour différents matériaux. Les rendements de chacun des mécanismes (réaction photonucléaire, spallation neutronique, spallation pionique, spallation muonique et spallation protonique) sont détaillés. Sur cette figure, chacune des particules à l'origine des réactions présentées ( $\gamma$ , n, $\pi$ et p) ont été produites suite au passage d'un muon. Cette figure est extraite de Araujo <i>et al.</i> (2005). . . . .	32
1.8	Simulation sous GEANT4 de la contribution relatives de différents mécanismes de production de neutrons suite à la traversée par un flux de muons de 10 à 1000 GeV d'un plastique scintillant organique (ici C <sub>10</sub> N <sub>20</sub> ). Plusieurs mécanismes sont considérés, parmi lesquels : la réaction photonucléaire, la spallation neutronique, la spallation pionique, la spallation muonique, la spallation protonique et l'absorption de pion. La catégorie "autres" mécanismes, regroupe des mécanismes de moindre importance (tels que des réactions de spallation impliquant des fragments de fissions ou certains hadrons). Cette figure est extraite de Araujo <i>et al.</i> (2005). . . . .	33
1.9	Schéma des mécanismes d'interaction des photons (de 1 keV à 100 MeV) avec la matière. a. : effet photoélectrique, b. : effet Compton, c. : création de paires. . . . .	35
1.10	Coefficient d'atténuation linéaire du germanium (normalisé par la densité du matériau) en fonction de l'énergie du photon incident, d'après Hubbell et Seltzer (2004). . . . .	36
1.11	Schéma illustrant le "fond Compton" : spectre résultant du dépôt d'énergie d'une source mono-énergétique de photon à $E_\gamma$ (ici $E_\gamma > 1022$ keV). Ainsi, un pic de <i>haute énergie</i> augmente la ligne de base du spectromètre à plus basse énergie. Ce schéma est tiré de Aberlizov (2008). . . . .	36

1.12	Schéma illustrant le phénomène de sommation de radiations durant la mesure. Sur ce schéma : $X$ , $X_1$ et $X_2$ sont des radionucléide qui se désintègrent ; $r'$ , $r$ , $r_1$ et $r_2$ sont les radiations qu'ils émettent lors de cette désintégration. Les cas 1. et 2. correspondent à deux versions du cas de figure de sommations vraies, le cas 3. correspond au cas de figure de sommations fortuites. Le cas 1. diminue fictivement le comptage dans la <i>ROI</i> de $r$ , les cas 2. et 3. augmentent fictivement le comptage dans la <i>ROI</i> de $r$ . . . . .	40
1.13	Stations Particule de la composante radionucléide du Système de Surveillance International pour le TICE. État du réseau en janvier 2014. Vert : station opérationnelle. Rouge : station non-opérationnelle. Source : <a href="http://www.ctbto.org">www.ctbto.org</a> . . . . .	42
1.14	Stations Gaz Noble de la composante radionucléide du Système de Surveillance International pour le TICE. État du réseau en janvier 2014. <a href="http://www.ctbto.org">www.ctbto.org</a> . . . . .	43
1.15	Schéma du prototype combinant détecteur HPGe et détecteur Silicium (de type SBB) présenté dans Schroettner <i>et al.</i> (2010). . . . .	46
1.16	Spectre d'émission en électrons d'un mélange $^{133m,133}\text{Xe}$ obtenu à l'aide du détecteur décrit dans Henning <i>et al.</i> (2012b). Cette figure illustre que les mesures d'électron (en direct ou en coïncidence électron/électron) ne sont pas adaptées à la mesure d'échantillons contenant plusieurs radionucléides à l'échelle de traces. . . . .	48
1.17	Photographies du spectromètre GAMMA <sup>3</sup> (à gauche) et du détecteur PIPS-box (à droite). . . . .	49
2.1	Schémas des différentes géométries d'échantillons environnementaux, et leurs configurations de mesures associées. Les échantillons sont en gris, tandis que les cristaux de germanium sont en bleu ciel. Les échantillons A, B, C et E sont des filtres atmosphériques (utilisés pour le piégeage des aérosols), qui se présentent sous forme de disques. Les échantillons F, G et H sont des échantillons volumiques qui se présentent sous forme de cylindres. . . . .	54
2.2	Photographie de l'intérieur de la PIPSBox. . . . .	55
2.3	Photographie de la chambre de mesure (de 50 L de volume) du spectromètre GAMMA <sup>3</sup> . Les détecteurs au germanium ATHOS, PORTHOS et ARAMIS sont placés en configuration de mesure pour un échantillon de type SG500. Les différentes couches de blindage sont numérotées de 1 à 6. . . . .	57
2.4	Schéma illustrant le fonctionnement d'une voie d'entrée d'une carte DGF Pixie-4 <sup>TM</sup> . Le signal du préamplificateur (ADC) est représenté par des carrés (courbe en haut), le signal en sortie du filtre numérique "rapide" (FF) est représenté par des croix (courbe en bas) et le signal en sortie du filtre numérique "lent" (SF) est représenté par des losanges (courbe du milieu). Lorsque le signal en sortie du filtre rapide dépasse un certain seuil, le temps de l'événement est relevé. L'amplitude de l'événement est ensuite relevé à un instant précis en fonction des paramètres du filtre "lent". Ce schéma est inspiré du manuel d'utilisateur du Pixie-4 <sup>TM</sup> . . . . .	59



2.5	Schéma illustrant le fonctionnement d'un filtre trapézoïdal de temps de montée $RT/f_{ech}$ et de temps de palier $FT/f_{ech}$ . Le filtre calcule la différence normalisée entre deux moyennes, calculées chacune pendant $RT/f_{ech}$ et séparées de $FT/f_{ech}$ . Ce calcul est détaillé dans l'équation 2.1. Ce schéma est inspiré du manuel d'utilisateur du Pixie-4 <sup>TM</sup> . . . . .	59
2.6	Courbes de réglage du temps de montée $RT$ du filtre lent d'un détecteur HPGe. Ce paramètre permet de régler la résolution en énergie des pics. Afin de s'assurer que le réglage est correct sur toute la gamme énergétique de mesure, la résolution obtenue avec un réglage du temps de montée est donnée pour trois points d'énergie répartis sur l'ensemble de cette gamme. . . . .	60
2.7	Photographie et schéma de simulation sous GEANT4 du détecteur PORTHOS pour la mesure d'une cellule gaz SPALAX. Les différents composants pris en compte par la simulation sont indiqués. . . . .	61
2.8	En haut : étalonnage (expérimental : + noir, et simulé : x rouge) en rendement d'absorption totale du détecteur PORTHOS en géométrie de mesure de cellule gaz SPALAX (cf. figure 2.7). En bas, les points noirs représente le ratio entre le rendement d'absorption totale simulé et expérimental correspondant. Le rendement d'absorption totale simulé est comparable à la mesure expérimentale car l'écart entre ces deux grandeurs est systématiquement inférieur à 5 % (et est en moyenne de l'ordre de 3 %). . . . .	62
2.9	Schéma de simulation sous GEANT4 de la géométrie de mesure d'un filtre de prélèvement des particules atmosphériques RASA compressé, placé entre ATHOS et ARAMIS. . . . .	63
2.10	Courbes de rendement de détection simulé sous GEANT4 et mesuré en géométrie de mesure d'un filtre compressé de prélèvement des particules atmosphériques RASA placé entre ATHOS et ARAMIS. Le rendement Somme correspond à l'addition des spectres d'ATHOS et ARAMIS. À titre de comparaison, le rendement d'absorption totale pour la même géométrie obtenu avec le détecteur FRL08_001 (détecteur HPGe de type N coaxial installé au laboratoire). . . . .	64
2.11	Schéma de simulation sous GEANT4 de la géométrie de mesure d'un volume SG500, placé entre ATHOS, PORTHOS et ARAMIS. . . . .	65
2.12	Illustration du gain de rendement apporté par l'utilisation de trois détecteurs au germanium au lieu d'un seul. La courbe en bleu est le spectre de mesure d'un standard de radioactivité en géométrie SG500 obtenu avec le détecteur PORTHOS, et la courbe rouge est le spectre de la même acquisition en sommant les spectres obtenus avec les détecteurs ATHOS, PORTHOS et ARAMIS. . . . .	66
2.13	Courbe de rendement de détection simulé sous GEANT4 en géométrie de mesure d'un volume SG500 placé entre ATHOS, PORTHOS et ARAMIS. Le rendement Somme correspond à l'addition des spectres d'ATHOS, de PORTHOS et d'ARAMIS. Dans cette géométrie, l'utilisation de trois détecteurs HPGe permet de gagner un facteur 2,5 à 2,6 sur le rendement par rapport à une mesure à un seul détecteur. . . . .	66

- 2.14 Schéma de simulation sous GEANT4 de la géométrie de mesure d'un LV835, placé entre ATHOS, PORTHOS et ARAMIS. Le LV835 est une brique de 835mL de volume, adaptée précisément à une mesure à trois détecteurs telle que celle présentée sur la figure. . . . . 67
- 2.15 Simulation Monte-Carlo du rendement d'absorption totale lors de la mesure d'un LV835. À titre de comparaison, le rendement d'absorption totale en géométrie SG500 est aussi affiché sur le graphique. En ordonné, le rendement d'absorption totale est multiplié par le volume de la géométrie correspondante (835mL pour LV835 et 500 mL pour le SG500) afin de tenir compte du gain en volume apporté par l'utilisation d'une géométrie LV835. 67
- 2.16 Évolution du taux de comptage intégral normalisé (par la masse de germanium) du bruit de fond sur la gamme [20-2500 keV] en fonction du blindage mis en œuvre. . . . . 69
- 2.17 Comparaison des bruits de fond de différents spectromètres au germanium (spécialisés dans les mesures de traces de radioactivité) en fonction de la profondeur du laboratoire. \* : le laboratoire Felsenkeller n'utilise pas de veto cosmique. \*\* : le bruit de fond intégral de l'IRSN est calculé sur la gamme de 30 à 1600 keV. \*\*\* : le bruit de fond intégral du CENBG est calculé sur la gamme de 30 à 3000 keV. Ces taux de comptage normalisés sont tirés de : Hult *et al.* (2000), Schwaiger *et al.* (2002), Hurtado *et al.* (2006), Povinec *et al.* (2004), Povinec *et al.* (2008b), Wieslander *et al.* (2009), Koehler *et al.* (2009), Ferreux *et al.* (2009), Haines *et al.* (2011), de Vismes Ott *et al.* (2012), Perrot *et al.* (2012), Hofmann *et al.* (2013), Thomas *et al.* (2013), van Beek *et al.* (2013), et Heusser *et al.* (2013). . . . 70
- 2.18 Illustration de l'effet d'une couche de blindage de polyéthylène boré (PE/B) sur les pics d'absorption neutronique par les noyaux de germanium. Les trois spectres présentés sont normalisés au temps d'acquisition de la mesure effectuée sur le détecteur PORTHOS(ici  $1,7 \cdot 10^6$  s). Les blindages des détecteurs FRL08\_001 et FRL08\_004 ne sont pas équipés de couche de PE/B, contrairement au détecteur PORTHOS. . . . . 74
- 2.19 Illustration de l'effet d'une couche de blindage de polyéthylène boré (PE/B) sur les pics de diffusion inélastique des neutrons sur les noyaux de germanium. Les trois spectres présentés sont normalisés au temps d'acquisition de la mesure effectuée sur le détecteur PORTHOS. Les blindages des détecteurs FRL08\_004 et FRL08\_001 ne sont pas équipés de couche de PE/B, contrairement au détecteur PORTHOS. À titre d'information, le pic d'émission  $\gamma$  principal du  $^{214}\text{Bi}$  à 609,3 keV, le pic d'annihilation à 511 keV et la ROI de l'émission à 477 keV de dé-excitation du  $^7\text{Li}$  (suite à la capture de neutron par le  $^{10}\text{B}$ ) sont indiqués sur chacun des spectres. On remarque que le spectre du détecteur PORTHOS ne présente pas de comptage particulier dans la ROI du  $^7\text{Li}$ . . . . . 75

2.20	Taux de comptage intégral (en $\text{h}^{-1}$ ) dans la région d'intérêt de l'émission $\gamma$ principale du $^{214}\text{Pb}$ ( $ROI : 352 \pm 2,6 \text{ keV}$ ) en fonction du débit d'azote injecté. Ce comptage correspond à la moyenne des comptages relevés dans ATHOS, PORTHOS et ARAMIS. On remarque qu'au dessus d'un débit de 300 L/h, l'injection d'azote n'a plus d'effet sur le pic du $^{214}\text{Pb}$ . . . . .	76
2.21	Photographie d'une cellule gaz équipée de deux fenêtres en fibre de carbone. Cette cellule a été spécialement conçue pour être placée entre les détecteurs ATHOS et ARAMIS. . . . .	78
2.22	Schéma de simulation sous GEANT4 du détecteur PIPSBox. Le volume de gaz considéré est le volume inséré entre les deux PIPS (le "volume source central", égal à $10,6 \text{ cm}^3$ ), et les deux volumes insérés entre les PIPS et les fenêtres de carbone (les "volumes sources insérés", de $0,6 \text{ cm}^3$ chacun, sont les volumes de gaz compris entre un détecteur PIPS et une fenêtre en fibre de carbone). Les principaux volumes pris en compte dans la simulation sont détaillés : les fenêtres en fibres de carbone sont en vert, les détecteurs PIPS sont en vert clair, le capot aluminium en gris clair, le volume de source central en gris foncé et les volumes de sources insérés en bleu. . . . .	82
2.23	Rendements simulés d'absorption totale des électrons par un PIPS. Différentes compositions du gaz à 800 hPa ont été prises en compte. Les zones 1. (cette zone est plus grande pour la courbe en noire correspondant à un gaz composé à 70 % de xénon), 2. et 3. sont détaillées sur la figure. Dans la zone 1. le rendement d'absorption totale des électrons est fortement influencé par la composition du gaz. Dans la zone 2. le rendement d'absorption totale des électrons n'est pas influencé par la composition du gaz. Enfin, en zone 3. le rendement d'absorption totale des électrons diminue avec leur énergies car ceux-ci sont maintenant suffisamment énergétique pour traverser totalement le détecteur PIPS. . . . .	83
2.24	Rendements d'absorption totale simulés des électrons issus de la décroissance $\beta^-$ en fonction de l'énergie de coupure (ou $E_{min}$ ), par un PIPS en géométrie PIPSBox. Deux compositions de gaz à 1000 hPa sont considérées : un gaz d'azote pur, et un mélange 50/50 d'azote et de xénon. Deux décroissances $\beta^-$ sont considérées : celle du $^{133}\text{Xe}$ ( $E_{max} = 346 \text{ keV}$ ) et celle du $^{135}\text{Xe}$ ( $E_{max} = 905 \text{ keV}$ ). . . . .	85
2.25	Rendements de détection simulés des électrons issus de la décroissance $\beta^-$ en fonction de leur $E_{max}$ , pour différentes énergies de coupure (ou $E_{min}$ ), pour un détecteur PIPS en géométrie PIPSBox. Le gaz inséré dans la PIPS-Box est un mélange 50/50 d'azote et de xénon à 1000 hPa. Les émissions $\beta$ du $^{214}\text{Pb}$ sont dans la zone bleue clair, celles du $^{214}\text{Pb}$ sont dans la zone rouge clair, l'émission du $^{133}\text{Xe}$ est dans la zone vert clair et enfin celle du $^{135}\text{Xe}$ est dans la zone orange clair. . . . .	86
2.26	Rendements d'absorption totale simulés des photons par un détecteur PIPS en géométrie PIPSBox. Deux compositions de gaz à une pression proche de la pression atmosphérique ont été prises en compte : un gaz composé uniquement d'azote et un gaz composé à 70 % de xénon et 30 % d'azote. .	87

3.1	Photographie (à gauche) et modèle de simulation Monte-Carlo (à droite) de la configuration HPGe (détecteur PORTHOS)/PIPSBox de mesure des coïncidences photon/électron. . . . .	93
3.2	Schémas de décroissance des quatre isotopes radioactifs du xénon (cf. Chisté <i>et al.</i> (2014) et Axelsson <i>et al.</i> (2012)). Les événements de coïncidences qui vont servir à la mesure de ces radionucléides sont mis en avant : $K\alpha/K-CE(\gamma_{1,0})$ pour les $^{131m,133m}\text{Xe}$ (respectivement en bleu et en violet sur la figure), $\gamma_{1,0}/\beta_{0,1}$ pour les $^{133,135}\text{Xe}$ (respectivement en gris et en orange sur la figure). . . . .	94
3.3	Spectre simulé de coïncidences photon/électron correspondant à la mesure d'un étalon de $^{131m}\text{Xe}$ par les détecteurs PIPSBox et PORTHOS. Les ROI des événements de coïncidences K-X/K-CE sont mises en avant dans l'encart en haut à droite de la figure. . . . .	95
3.4	Spectre simulé de coïncidences photon/électron pour la mesure d'un étalon de $^{133m}\text{Xe}$ par la PIPSBox et PORTHOS. Les ROI des événements de coïncidences K-X/K-CE sont mises en avant dans l'encart en haut à droite de la figure. . . . .	96
3.5	Spectre simulé de coïncidences photon/électron pour la mesure d'un étalon de $^{133}\text{Xe}$ par le détecteur PIPSBox et PORTHOS. Les ROI des événements de coïncidences $\gamma/\beta^-$ sont mises en avant dans l'encart en haut à droite de la figure. . . . .	98
3.6	Spectre simulé de coïncidences photon/électron correspondant à la mesure d'un étalon de $^{135}\text{Xe}$ par le détecteur PIPSBox et PORTHOS. . . . .	102
3.7	Synthèse : mesure (sans veto cosmique) d'un étalon contenant les quatre radionucléides (1,72 Bq de $^{131m}\text{Xe}$ , 1,75 Bq de $^{133}\text{Xe}$ , 62 mBq de $^{133m}\text{Xe}$ et 27 mBq de $^{135}\text{Xe}$ ). En haut : spectre de coïncidence photon/électron. En bas à gauche : zoom sur la région 15-40 keV photon et 0-400 keV électron. En bas à droite : projection sur l'axe photon du spectre de coïncidence photon/électron (entre 55 et 950 keV). Les ROI utilisées pour la mesure de chacun des radionucléides sont entourées en rouge. D'autres ROI sont aussi mises en avant sur le spectre en bas à gauche de la figure : les ROI de coïncidence $K\beta-X/K-CE$ des $^{131m,133m}\text{Xe}$ (cercles noirs) et les ROI de coïncidence $K\alpha$ ou $\beta-X/K-CE+\beta$ des $^{133,135}\text{Xe}$ . Sur le spectre en bas à droite de la figure, les pics d'émission photon des $^{133,135}\text{Xe}$ sont clairement visibles. . . . .	104
3.8	Spectre de coïncidences photon/électron d'une mesure de bruit de fond de 2,04 jours en configuration PORTHOS/PIPSBox sans veto cosmique. Le spectre projeté sur l'axe des énergies électrons des événements dont l'énergie photon est entre 20 et 300 keV est donné sur la partie inférieure de la figure. Sur ce spectre projeté, les ROI électron des $^{131m,133m}\text{Xe}$ sont en vert. Ces spectres ont été affichés en 256 bins pour la voie PIPS et 512 bins pour la voie HPGe. . . . .	105

- 3.9 Zoom sur l'axe photon (entre 0 et 300 keV) d'un spectre de coïncidence photon/électron d'une mesure de bruit de fond de 2,04 jours en configuration PORTHOS/PIPSBox avec veto cosmique. Le spectre projeté sur l'axe des énergies électrons des événements dont l'énergie photon est entre 20 et 300 keV est donné sur la partie inférieure de la figure. Sur ce spectre projeté, les *ROI* électron des  $^{131m,133m}\text{Xe}$  sont en vert. Ces spectre ont été volontairement affichés en 256 bins pour la voie PIPS et 512 bins pour la voie HPGe. . . . . 106
- 3.10 Schéma illustrant (exemple d'un mélange 50 %/50 % en activité de  $^{131m,133}\text{Xe}$ ) l'interférence des photons  $K\alpha$ -X des  $^{133,135}\text{Xe}$  dans la *ROI*  $K\alpha$ -X des photons  $^{131m,133m}\text{Xe}$ . La courbe bleue claire représente le pic d'émission  $K\alpha$ -X du  $^{131m}\text{Xe}$  (en bleu foncé sont représentés les émissions  $K\alpha_1$  et  $K\alpha_2$ ). La courbe noire représente le pic d'émission  $K\alpha$ -X du  $^{133}\text{Xe}$  (en rouge sont représentés les émissions  $K\alpha_1$  et  $K\alpha_2$ ). Le détecteur considéré a une résolution en énergie de de 0,5 keV à 30 keV . . . . . 111
- 3.11 Spectre simulé de la mesure par coïncidences de  $^{214}\text{Pb}$ . Pour ce spectre, un million de désintégrations du  $^{214}\text{Pb}$  ont été simulées. Les *ROI* de mesure des radionucléides sont illustrées, ainsi que celles des événements de coïncidence  $\gamma/\beta$  du  $^{214}\text{Pb}$ . Les rendements de détection du  $^{214}\text{Pb}$  dans les *ROI* des radionucléides ont été déterminés et sont donnés dans le tableau 3.4. . . . . 115
- 3.12 Spectre simulé de la mesure par coïncidences de  $^{214}\text{Bi}$ . Pour ce spectre, un million de désintégration du  $^{214}\text{Bi}$  ont été simulées. Les *ROI* de mesure des radionucléides sont illustrées, ainsi que celles des événements de coïncidences  $\gamma/\beta$  du  $^{214}\text{Bi}$ . Les rendements de détection du  $^{214}\text{Bi}$  dans les *ROI* des radionucléides ont été déterminés et sont donnés dans le tableau 3.4. . . . . 116
- 3.13 Spectre des distributions des comptages nets ( $C_{\text{net}} = C - B$ ) pour le calcul des  $S_D$  et  $L_D$  des  $^{135,133m}\text{Xe}$ . Les estimations de bruit de blanc de mesure sont de 3,4 coups (pour le  $^{133m}\text{Xe}$ ) et 20,9 coups (pour le  $^{135}\text{Xe}$ ), ainsi les  $S_D$  et  $L_D$  sont obtenus à partir des équations 1.21 et 1.23 du cas des très faible taux de comptage (*i.e.* en utilisant la loi de Skellam, cf. section 1.4.1).120
- 3.14 Spectre de bruit de fond en coïncidence photon/photon mesuré pendant 16,2 jours. La configuration de mesure implique les détecteurs ATHOS et ARAMIS. Un zoom de la gamme d'énergie entre 0 et 600 keV est montré en bas à gauche de la figure. On y observe les lignes de coïncidence  $\gamma/511$  keV et une ligne diagonale correspondant à un photon de 511 keV (déposant de l'énergie dans les deux détecteurs HPGe par effet Compton). En bas à droite de la figure est présenté le spectre des photons mesurés par le détecteur ATHOS en coïncidence avec un photon mesuré à 511 keV par le détecteur ARAMIS. . . . . 123

- 3.15 Spectre de bruit de fond en coïncidence photon/photon mesuré pendant 16,2 jours lorsque le veto cosmique est activé. La configuration de mesure implique les détecteurs ATHOS et ARAMIS. Un zoom (dont la résolution en énergie a été artificiellement dégradée) sur la région  $[150 - 210] \times [10 - 30]$  (en keV) est montré en bas à gauche de la figure. On y observe deux événements de coïncidence d'intérêts correspondant au  $^{71m}\text{Ge}$  : la coïncidence 23,4 keV/176,2 keV et la coïncidence 13 keV/176,2 keV. En bas à droite de la figure est présenté le spectre des photons mesurés par le détecteur ATHOS en coïncidence avec un photon mesuré à 511 keV par le détecteur ARAMIS, ce spectre présente un comptage beaucoup plus faible que son équivalent en figure 3.14 . . . . . 124
- 3.16 Spectres de photons mesurés par le détecteur ATHOS : en coïncidence avec les photons détectés par le détecteur ARAMIS (cas A. spectre du haut), puis les mêmes événements en activant le veto cosmique (cas B. spectre du milieu), et enfin en rajoutant la condition d'une coïncidence avec un photon mesuré entre 20 et 2400 keV par le détecteur PORTHOS. . . . . 125
- 3.17 Schéma simplifié de la décroissance du  $^{71m}\text{Ge}$  en  $^{71}\text{Ge}$ . La transition directe de l'état métastable (numéroté 2 sur le schéma) à l'état stable (numéroté 0 sur le schéma) n'est pas possible. Ce schéma est inspiré de Murray *et al.* (1971). . . . . 125
- 3.18 Schéma de décroissance du  $^{134}\text{Cs}$ . Source : Chisté *et al.* (2014). L'émission coïncidente  $\gamma_{3,1}/\gamma_{1,0}$  est surlignée en bleu clair. . . . . 126
- 3.19 Spectre de coïncidences photon/photon d'une source de  $^{134}\text{Cs}$  de 4,16 kBq placée entre les détecteurs ATHOS et ARAMIS. Le temps d'acquisition de cette mesure est de 66,4 min. Les événements coïncidents observés correspondent bien au schéma de désintégration du  $^{134}\text{Cs}$  (cf. figure 3.18). Les régions d'intérêts des événements  $\gamma_{1,0}(604,7 \text{ keV})/\gamma$  (en bleu),  $\gamma_{3,1}(795,9 \text{ keV})/\gamma$  (en vert) et  $\gamma_{5,3}(569,3 \text{ keV})/\gamma$  (en rouge) sont données sur la partie inférieure de la figure. . . . . 127
- 3.20 Spectres d'émission de photons d'une source de  $^{134}\text{Cs}$  (4,16 kBq) placée entre les détecteurs ATHOS et ARAMIS. La durée d'acquisition de cette mesure est de 66,4 min. La courbe noire représente le spectre mesuré par le détecteur ATHOS. La courbe rouge représente le spectre des photons mesurés dans le détecteur ATHOS en coïncidence avec des photons de 569,3 keV mesurés dans le détecteur ARAMIS. La courbe bleue représente le spectre des photons mesurés dans le détecteur ATHOS en coïncidence avec des photons de 604,7 keV mesurés dans le détecteur ARAMIS. La courbe verte représente le spectre des photons mesurés dans le détecteur ATHOS en coïncidence avec des photons de 795,8 keV mesurés dans le détecteur ARAMIS. Le zoom en bas à gauche s'intéresse aux photons entre 550 et 850 keV. . . 128
- 3.21 Spectres à deux dimensions d'une mesure pendant 4100 minutes en coïncidences photon/photon d'un échantillon de  $^{134}\text{Cs}$  (13 mBq) placé dans un filtre frais de prélèvement des particules atmosphérique (type 3M). . . . . 130

3.22	Spectres à une dimension d'une mesure pendant 4100 minutes en direct ou en coïncidences d'un échantillon de $^{134}\text{Cs}$ (13 mBq) placé dans un filtre frais de prélèvement des particules atmosphérique (type 3M). . . . .	131
3.23	Spectres d'émission de photons mesurés par le détecteur PORTHOS d'échantillons artificiels d'un mélange $^{40}\text{K}$ et $^{110\text{m}}\text{Ag}$ dans de l'eau en géométrie SG500. Les trois échantillons présentés ont une quantité identique de $^{40}\text{K}$ (correspondant à 34 g de KOH). Le spectre sans $^{110\text{m}}\text{Ag}$ est en vert (durée d'acquisition : 80700 s), le spectre en bleu correspond à une activité en $^{110\text{m}}\text{Ag}$ de 328 mBq (durée d'acquisition : 88100 s), et le spectre en rouge correspond à un échantillon dont l'activité en $^{110\text{m}}\text{Ag}$ est de 20 Bq (durée d'acquisition : 83700 s). . . . .	133
3.24	Spectres des photons mesurés par le détecteur PORTHOS (avec veto cosmique) en coïncidences avec un photon à 657,8 keV mesuré par les détecteurs ATHOS ou ARAMIS, d'échantillons artificiels d'un mélange $^{40}\text{K}$ et $^{110\text{m}}\text{Ag}$ dans de l'eau en géométrie SG500. Les trois échantillons présentés contiennent une quantité identique de $^{40}\text{K}$ (correspondant à 34 g de KOH). Le spectre sans $^{110\text{m}}\text{Ag}$ ajouté est en vert (durée d'acquisition : 80700 s), le spectre en bleu correspond à l'échantillon dont l'activité en $^{110\text{m}}\text{Ag}$ est de 328 mBq (durée d'acquisition : 88100 s), et le spectre en rouge correspond à l'échantillon dont l'activité en $^{110\text{m}}\text{Ag}$ est de 20 Bq (durée d'acquisition : 83700 s). . . . .	134
3.25	Mesure en coïncidence photon/photon ( $\gamma/\gamma$ et $X/\gamma$ ) d'une source (460 Bq) de $^{196}\text{Au}$ pendant 20 min. En haut : spectre de coïncidence à deux dimensions, sur lequel les <i>ROI</i> de coïncidence $\gamma/\gamma$ (en vert) ou $X/\gamma$ (en rouge) sont indiquées. En bas, comparaison des photons mesurés par le détecteur ATHOS : en direct (courbe bleue), en coïncidence avec un photon $K\alpha$ -X émis par l' $^{196}\text{Au}$ (en rouge) ou en coïncidence avec un photon $\gamma$ à 333 keV de l' $^{196}\text{Au}$ (en vert). L'encart en haut à droite de ces spectres correspond au zoom sur la région 325-445 keV en énergie photon. Les principales raies observables dans ces spectres sont montrées dans cet encart. . . . .	136
3.26	Spectres d'une mesure de bruit de fond de 48,9 heures en coïncidence électron/électron du détecteur PIPSBox sans (spectre du haut) et avec (spectre du bas) veto cosmique. . . . .	138
3.27	Spectres d'une mesure en coïncidences électron/électron du détecteur PIPSBox pendant 19,4 heures d'un étalon de radioxénons (13,3 Bq de $^{133}\text{Xe}$ , 33,6 Bq de $^{131\text{m}}\text{Xe}$ , 0,31 Bq de $^{133\text{m}}\text{Xe}$ et 0,05 Bq de $^{135}\text{Xe}$ ). . . . .	139
A.1	Radiographie du détecteur PORTHOS. . . . .	157
B.1	Radiographie du détecteur ATHOS. . . . .	159
C.1	Radiographie du détecteur ARAMIS. . . . .	161

# Liste des tableaux

1.1	Caractéristiques de fonctionnement de différents détecteurs de particules. ++/+/-/- - sont des graduations (décroissantes) de qualités. Les informations relatives à la résolution, au coût et à la robustesse des détecteurs sont données à titre indicatif puisqu'elles dépendent des caractéristiques géométriques des détecteurs considérés et des applications particulières que l'on en fait. . . . .	12
1.2	Comparaison des différents seuils de détection. L'approche bayésienne est obtenue de Vivier et Aupiais (2007). Ici, $B$ est normalisé au temps d'acquisition d'une mesure d'échantillon, et le seuil de décision est donné en comptage (certains le donnent en taux de comptage). $k^*$ est obtenu sous l'hypothèse d'une distribution d'une loi normale. . . . .	21
1.3	Ordre de grandeur des taux de comptage des composants du bruit de fond de mesure d'un spectromètre HPGe. Ce spectromètre est installé dans un blindage de 10 cm de plomb et est équipé d'un cristal de germanium de 1 kg (repris de Povinec <i>et al.</i> (2008a)). . . . .	22
1.4	Principales émissions $\alpha$ , électrons ou photons du $^{222}\text{Rn}$ et de ses descendants (les descendants des branches minoritaires sont négligés). Chacune des émissions est donnée avec son énergie et sa probabilité d'émission. L'énergie des émissions $\beta$ correspond à l'énergie maximale du spectre d'émission $\beta$ du radionucléide considéré. Les émissions dont les probabilités sont faibles (inférieures à 0,1 %) ont été négligées. Dans le cadre d'émissions multiples (plusieurs $\gamma$ , $\beta^-$ , X, etc), seules les émissions principales ou ayant un intérêt particulier ont été relevées. Les données nucléaires présentées ici sont tirées de la Table de Radionucléide (cf. Chisté <i>et al.</i> (2014)). . . . .	24
1.5	Composition et flux moyen du rayonnement cosmique secondaire au niveau de la mer (Heusser (1995)). . . . .	25
1.6	Pics principaux d'activation ou d'excitation des isotopes du germanium (Siiskonen et Toivonen (2005) et Bossew (2005)). Les valeurs des périodes sont tirées de Gilmore (2008). Les indices à côté du nombre de nucléon de chacun des radionucléide correspondent à : m, un état métastable; et * un état excité. . . . .	28



1.7	Principaux matériaux utilisés pour l'absorption des photons lors de la mise en place d'un blindage passif. Les matériaux de faible masse atomique sont surtout utilisés pour l'absorption des photons X (dans le cas d'un blindage multi-couches). Les masses atomiques sont données en unité de masse des atomes unifiée. . . . .	30
1.8	Emissions principales des 4 radionucléides d'intérêt pour le TICE. Les probabilités d'émission des rayonnements considérés sont données entre parenthèses. Ces données sont tirées de la Table des Radionucléides (cf. Chisté <i>et al.</i> (2014)) et de Axelsson <i>et al.</i> (2012). La raie d'émission $K\alpha$ -X correspond aux émissions $K\alpha_1$ et $K\alpha_2$ . La raie d'émission $K\beta'_1$ -X correspond aux émissions $K\beta_1$ , $K\beta_3$ et $K\beta_5$ . . . . .	38
1.9	Relevé non exhaustif du bruit de fond de différents laboratoires (de profondeur variable) impliqués dans la mesure de traces de radioactivité. . . .	41
1.10	Critères de certification du TICE pour l'expertise des échantillons de station Gaz Noble (cf. CTBTO (1996)). . . . .	45
1.11	Rendements de détection des radionucléides pour le détecteur HPGe/Silicium SSB développé par Schroettner <i>et al.</i> (2010). . . . .	47
2.1	Caractéristiques en recette usine des détecteurs au germanium ATHOS, PORTHOS et ARAMIS. * : le rendement est calculé selon la norme ANSI/Std 325-1996. ** : ce comptage est donné sur un spectre de mesure de bruit de fond dans un blindage standard. . . . .	53
2.2	Résolutions (FWHM) mesurées des détecteurs germanium pour trois énergies caractéristiques. . . . .	53
2.3	Grandeurs typiques des temps de montée ( $RT$ ) et de palier ( $FT$ ) des filtres "rapide" et "lent" des cartes DGF Pixie-4 <sup>TM</sup> pour les détecteurs utilisés dans le spectromètre GAMMA <sup>3</sup> . . . . .	61
2.4	Paramètres optimisés clefs du modèle de simulation Monte-Carlo des détecteurs ATHOS, PORTHOS et ARAMIS. Les paramètres marqués * sont obtenus à partir des données du constructeur ou de l'analyse des radiographies des détecteurs, ceux marqués ** sont optimisés à partir de la comparaison entre les étalonnages en rendement simulé et mesuré. . . . .	63
2.5	Comparaison des taux de comptage normalisés de bruit de fond des détecteurs du spectromètre GAMMA <sup>3</sup> (avec injection d'azote à 400 L/h) avec ceux de deux spectromètres du laboratoire : FL08_001 (détecteur HPGe coaxial de type N, cristal de 250 cm <sup>3</sup> ) et FRL08_004 (détecteur HPGe coaxial de type P, cristal de 186 cm <sup>3</sup> ). . . . .	69

2.6	Taux de comptage des raies X et $\gamma$ caractéristiques du bruit de fond des détecteurs au germanium du spectromètre GAMMA <sup>3</sup> . À titre de comparaison, les taux de comptage des mêmes pics dans les bruits de fond des détecteurs FRL08_001 et FRL08_004 sont donnés. Les ratios entre la moyenne des taux de comptage relevés dans les détecteurs ATHOS, PORTHOS et ARAMIS (avec injection d'azote évaporé depuis le Dewar) et ceux relevés dans le bruit de fond des détecteurs de FRL08_001 ou FRL08_004 sont donnés entre crochets. . . . .	71
2.7	Résultats des mesures effectuées au LSM pour la quantification des impuretés radioactives dans les composants des fenêtres en fibre de carbone. Chacune des mesures a duré une semaine. Ces impuretés radioactives sont données en mBq/g. Les incertitudes liées à ces résultats sont imposées à 20 % du fait de l'étalonnage par simulation Monte-Carlo des rendements d'absorption totale du détecteur (sans radiographie de celui-ci et sans l'utilisation de source radioactive). . . . .	73
2.8	Comparaison des Activités Minimales Détectables obtenues sur le spectromètre GAMMA <sup>3</sup> et sur un détecteur HPGe de type BEGe5030 (entouré de 15 cm de plomb et sans veto cosmique) pour les quatre radionucléides d'intérêts du TICE en géométrie de mesure de cellule gaz SPALAX. * : AMD calculée pour une mesure de 6 jours, ** : AMD calculée pour une mesure de 2 jours. . . . .	78
2.9	Comparaison des Activités Minimales Détectables obtenues sur le spectromètre GAMMA <sup>3</sup> et FRL08_001 (pour une durée d'acquisition de 480000 s) pour dix radionucléides d'intérêt majeur pour la surveillance du TICE (cf. Matthews (2005)), en géométrie RASA. Il est à noter que la quantification sur une mesure 480 000 s des radionucléides à "vie courte" ( <sup>99m</sup> Tc et <sup>133</sup> I) n'est pas optimale. . . . .	79
2.10	Comparaison des Activités Minimales Détectables obtenues sur le spectromètre GAMMA <sup>3</sup> ou FRL08_001 pour une acquisition de 480000 s de 10 radionucléides d'intérêt majeur pour la surveillance des sites des essais nucléaires, en géométrie SG500 (matrice équivalente eau). . . . .	81
3.1	Rendements de détection en coïncidences mesurés et simulés des radionucléides, en utilisant une configuration de mesure PORTHOS/PIPSBox. *Les rendements de coïncidences $\gamma/\beta$ sont très sensibles à la coupure basse énergie des détecteurs PIPS, ce qui peut expliquer l'écart observé entre la mesure expérimentale et la simulation. Les rendements de détection présentés dans le tableau 3.1 pour le détecteur développé par T. Schroettner (cf. Schroettner <i>et al.</i> (2010)) sont rappelés à titre de comparaison. ** : dans l'article Schroettner <i>et al.</i> (2010), il n'est pas fait mention d'une énergie de coupure, et les rendements en coïncidence $\gamma/\beta$ sont donnés sur [0-400] keV (pour l'énergie électron du <sup>133</sup> Xe) et [0-950] keV (pour l'énergie électron du <sup>135</sup> Xe). . . . .	103

3.2	Taux de comptage moyens (en $s^{-1}$ ), dans les <i>ROI</i> des radionucléides, et intégraux, relevés pour une configuration de mesure PORTHOS/PIPSBox, avec ou sans l'utilisation du veto cosmique. Les taux de comptages <i>moyens</i> ont été calculés à partir des comptages relevés dans un spectre projeté (le spectre des électrons détectés en coïncidences avec les photons d'énergie comprise entre 20 et 290 keV). Les incertitudes types (à $1\sigma$ ) sont données entre parenthèses. Les taux comptages moyens avec veto cosmique ont une incertitudes élevée car le comptage mesuré correspondant est très faible (par exemple, 4 coups dans la <i>ROI</i> électron en 2,04 jours sur la plage d'énergie photon [20-290 keV] pour les xénons métastables). . . . .	107
3.3	Évolution du tableau 2.8 afin de prendre en compte les <i>AMD</i> des radionucléides obtenues lors de leur mesure par spectrométrie de coïncidence photon/électron. Pour ces mesures de coïncidences, les bruits de fond ont été calculés à partir des résultats du tableau 3.2. Les $S_D$ et $L_D$ correspondants ont été calculés dans le cas de la statistique de Poisson. * : <i>AMD</i> calculée pour une mesure de 6 jours, ** : <i>AMD</i> calculée pour une mesure de 2 jours.	108
3.4	Simulation Monte-Carlo des différents rendements de détection utilisés dans les équations 3.35, 3.37, 3.45 et 3.46. Chacune de ces valeurs a été obtenue par simulation d'un million d'événements. Les incertitudes associées sont données entre parenthèses. . . . .	117
3.5	Contribution du $^{214}\text{Pb}$ et du $^{214}\text{Bi}$ dans le bruit blanc de mesure des radionucléides. Cette contribution est normalisée par le comptage du pic d'émission $\gamma$ respectif des ces deux radio-éléments, tel que définit dans les équations 3.47 et 3.48. Ces contributions sont obtenues par simulation Monte-Carlo. .	117
3.6	Rendements d'interférence entre radionucléides. Le pourcentage entre parenthèses correspond à l'incertitude sur ce rendement. Le pourcentage entre crochet correspond au ratio entre le rendement d'interférence du radionucléide considéré et son rendement de détection. . . . .	118
3.7	Étude de cas : essai nucléaire DPRK 2013, dans le cas d'une station gaz noble de type SPALAX équipée d'un détecteur photon/électron à haute résolution en énergie.* : ces valeurs sont celles fournies dans l'article de Ringbom <i>et al.</i> (2014). ** : Le $L_c$ est la valeur de $S_D$ rapportée en activité volumique, la valeur donnée entre crochet est le gain constaté par rapport aux données fournies dans l'article de Ringbom <i>et al.</i> (2014). . . . .	121
3.8	Étalonnage en rendement de détection de la configuration de mesure ATHOS/ARAMIS pour le $^{134}\text{Cs}$ . La source est ponctuelle, au contact d'un filtre 3M compressé de prélèvement des particules atmosphériques blanc ( <i>i.e.</i> sans radioactivité), placé entre les deux détecteurs. . . . .	129

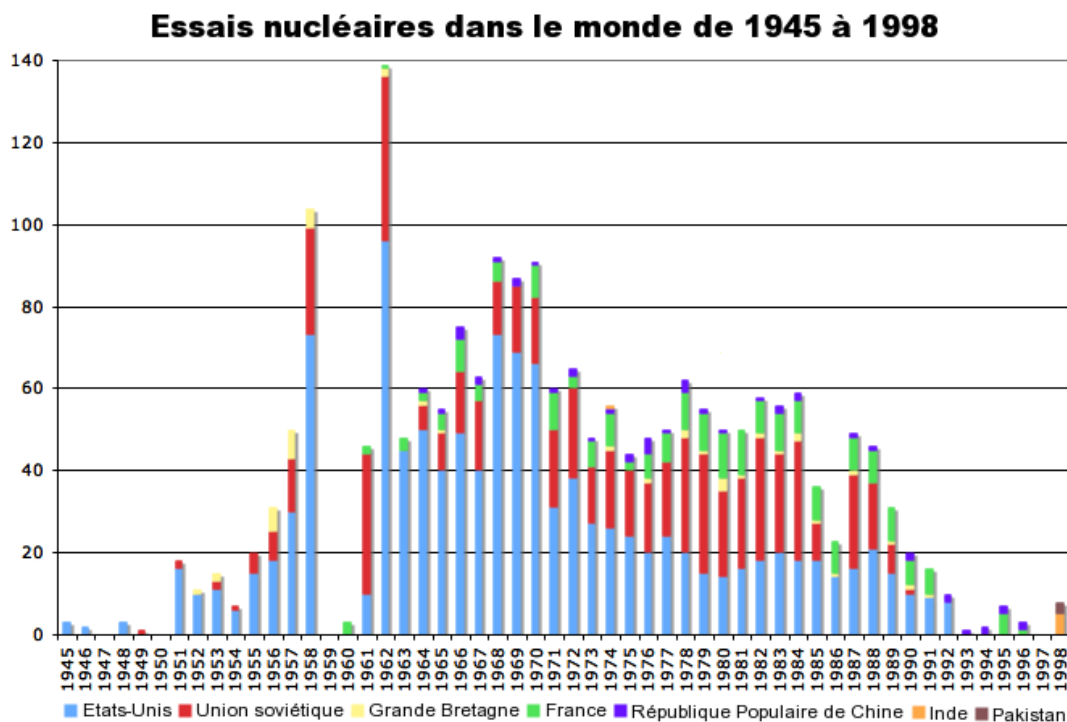
# Glossaire et notations

- *AMD* : Activité Minimale Détectable.
- ARAMIS : détecteur HPGe horizontal de GAMMA<sup>3</sup>.
- ATHOS : détecteur HPGe horizontal de GAMMA<sup>3</sup>.
- BEGe : Technologie de détecteur HPGe, développée par la société Canberra. "Broad Energy Germanium".
- bdf : bruit de fond.
- Cellule SPALAX : Cellule gaz de mesure des échantillons environnementaux produits par une station SPALAX.
- Détecteur HPGe : Détecteur au Germanium Ultra-Pur.
- CE : électron de conversion interne. K-CE : CE de couche K, L-CE : CE de couche L, etc...
- FRL08\_001 : Spectromètre HPGe bas-niveau installé au CEA/DAM/DIF/DASE et dédié aux mesures du TICE. C'est un cristal de germanium de type coaxial, de 250 cm<sup>3</sup> de volume. Il est équipé d'un veto cosmique.
- FRL08\_004 : Spectromètre HPGe bas-niveau installé au CEA/DAM/DIF/DASE et dédié aux mesures du TICE. C'est un cristal de germanium de type coaxial, de 186 cm<sup>3</sup> de volume. Il est équipé d'un veto cosmique.
- $L_D$  : Limite de détection.
- m.w.e. : mètre équivalent eau. Unité de mesure de profondeur d'un laboratoire, en normalisant la profondeur de matière traversée par rapport à de l'eau pour l'étude de l'atténuation par le sol du rayonnement cosmique. Cette unité permet de s'affranchir de la composition d'un sol particulier (roche, sable, calcaire).
- OTICE : Organisation du TICE.
- PA : Produit d'activation lors d'une fission nucléaire.
- PF : Produit de fission nucléaire.
- PIPS : Technologie de détecteur Si-PIN développé par la société Canberra.
- PORTHOS : détecteur HPGe vertical de GAMMA<sup>3</sup>.
- Radioxénon : Radio-isotope du xénon.
- RASA : Géométrie standardisée de mesure pour les échantillons environnementaux. Le filtre RASA est un filtre de mesure des aérosols atmosphérique.
- *ROI* : Région d'intérêt.

- $S_D$  : Seuil de décision.
- SG500 : Géométrie standardisée de mesure pour les échantillons environnementaux. Volume Cyindrique de 500 mL.
- SPALAX : Système de Prélèvement d’Air automatique en Ligne avec l’Analyse des radioXénons. Développement français pour le prélèvement et la mesure des traces atmosphériques de radio isotopes du xénon dans le cadre du TICE.
- SSI : Système de Surveillance International du TICE. Ensemble de capteurs répartis à la surface du globe par l’OTICE pour la détection de toutes les observables (ondes et radionucléides) émises lors d’un essai nucléaire.
- $T_{acq}$  : notation générale de la durée d’acquisition d’une mesure.
- TICE : Traité d’Interdiction Complète des Essais nucléaires.

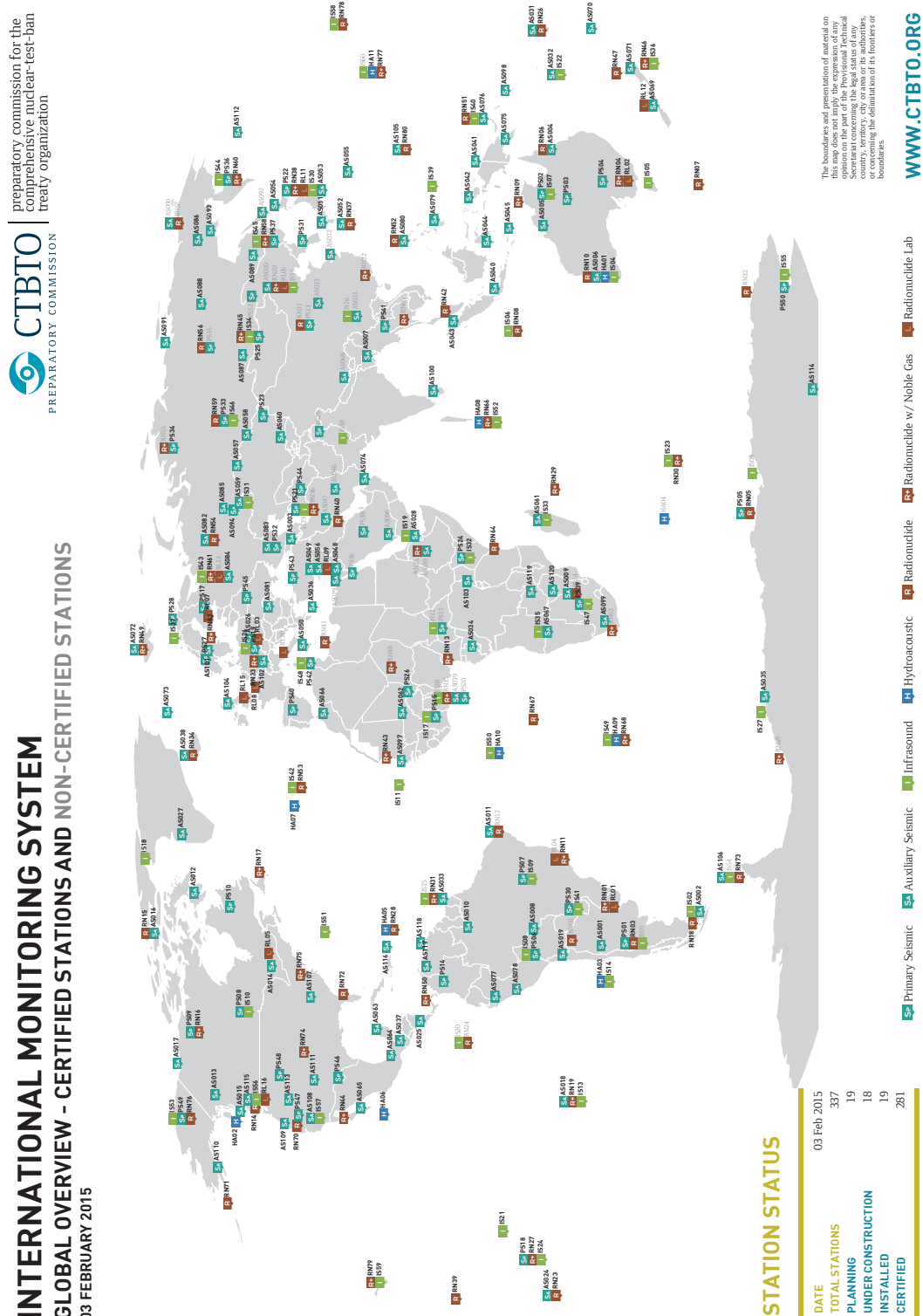
# Introduction

Après plus de 2000 essais nucléaires conduits entre 1945 et 1996 (cf. figure 1) plusieurs traités limitant soit les essais nucléaires (Traité d'interdiction Partielle des Essais nucléaires, TIPE 1963) soit la prolifération des armes nucléaires (Traité sur la Non-Prolifération, TNP 1968), la Conférence du Désarmement a permis à l'Organisation des Nations Unies d'adopter en conférence plénière le 9 septembre 1996 le Traité d'Interdiction Complète des Essais nucléaires (TICE).



**Figure 1** – Schéma chronologique des essais nucléaires conduits sur terre (en surface, extra-atmosphérique, sous-marin ou souterrain) entre 1945 et 1998. Figure extraite de Wikipedia (2006).

Le TICE a été ouvert à la signature le 24 septembre 1996 et a depuis été signé par 183 états et ratifié par 163 d'entre eux (au 2 février 2015, [www.ctbto.org](http://www.ctbto.org)). En revanche, il n'est pas encore entré en vigueur puisque : (i) 3 états de l'Annexe 2 (état doté de capacités nucléaires) ne l'ont pas signé (l'Inde, le Pakistan et la Corée du Nord), et (ii) 5 états de l'Annexe 2 l'ont signé mais ne l'ont pas encore ratifié (la Chine, l'Égypte, les États-Unis, l'Iran et Israël).



**Figure 2** – Système de Surveillance International (SSI, IMS en anglais) du TICE. Source [www.ctbto.org](http://www.ctbto.org).

Le traité (cf. CTBTO (1996)) interdit tout essai ou explosion nucléaire (pacifique ou

militaire) qu'il soit atmosphérique, extra-atmosphérique, sous-marin ou souterrain. Il prévoit : (i) la création d'une organisation, l'OTICE, chargée de la vérification du respect du traité et (ii) l'installation d'un Système de Surveillance International (SSI, cf. figure 2) dans le but de détecter toutes les observables émises lors d'une explosion d'une puissance d'au moins 1 kT. Le SSI met en œuvre 4 technologies de mesure réparties à la surface du globe pour la détection de ces observables :

- des technologies de mesure des formes d'ondes : les stations sismiques, hydro-acoustiques, ou infrasonores,
- des technologies de mesure des particules radioactives dans l'atmosphère : les stations de prélèvement et de mesure des aérosols ou des gaz nobles radioactifs (cf. figure 3).

En plus des stations de détection des particules radioactives dans l'atmosphère, l'OTICE est appuyée par un réseau de 16 laboratoires experts pour la mesure de traces de radionucléides. En cas d'échantillon suspect produit et mesuré en station, celui-ci peut être envoyé pour expertise par l'OTICE vers un de ces laboratoires.

Lors d'une explosion, la mesure des formes d'onde (et principalement des ondes sismiques) qu'elle émet permet d'en déterminer la localisation et la puissance. Mais seule la mesure des particules radioactives émises permet dans un premier temps d'affirmer à coup sûr le caractère nucléaire d'une explosion, et dans un second temps de la caractériser (*i.e.* définir la nature du matériau fissile). C'est pourquoi la mesure des aérosols et des gaz nobles radioactifs se doit d'être la plus juste possible. Pour ce faire, 80 stations de prélèvement et de mesure des aérosols radioactifs ont été réparties à la surface de la Terre. Parmi ces stations, 40 seront (à terme) équipées de stations de prélèvement et de mesure des gaz nobles radioactifs.

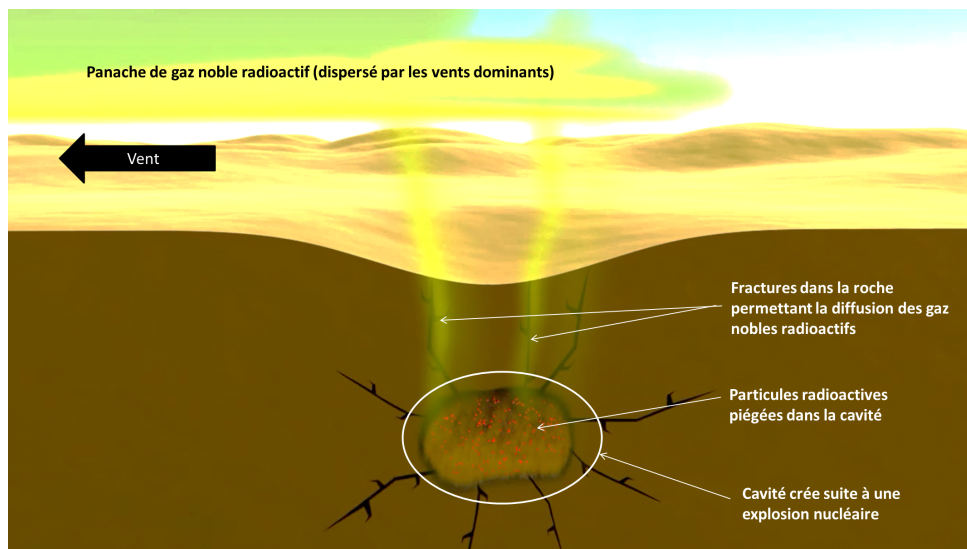
Lors d'un essai nucléaire à l'air libre, les rejets de particules radioactives dans l'atmosphère sont conséquents, et la détection et la caractérisation de ce type d'essai sont relativement aisées. En revanche, un essai nucléaire (souterrain ou sous-marin) est particulièrement difficile à détecter et à caractériser, la quantité de radionucléides (essentiellement sous forme gazeuse) remise à l'atmosphère étant potentiellement très faible. C'est pour parer à cette éventualité que les mesures de radioactivité atmosphériques, effectuées dans le contexte du TICE, mettent en œuvre des systèmes de prélèvement et de détection d'une grande sensibilité, notamment les stations radionucléides gaz rares, spécifiquement conçues pour mesurer les radioxénons atmosphériques ( $^{131m}\text{Xe}$ ,  $^{133m}\text{Xe}$ ,  $^{133}\text{Xe}$  et  $^{135}\text{Xe}$ ) à un niveau de l'ordre de  $10^{-3}$  Bq.m $^{-3}$  en  $^{133}\text{Xe}$  (spécification du TICE, annexe 1 du Protocole).

Dans le cas particulier d'un essai nucléaire souterrain bien confiné, seuls les gaz nobles radioactifs, du fait de leur faible interaction avec le milieu environnant et leur grande mobilité, seront potentiellement relâchés dans l'atmosphère. En effet, au travers des failles naturelles du massif rocheux constituant le confinement ou *via* les fractures de ce massif





**Figure 3** – Station de prélèvement et de mesure des gaz nobles radioactifs et des particules atmosphériques FRP30 et FRX30 (de type SPALAX, installée sur l’archipel des Kerguelen).



**Figure 4** – Schéma illustrant la création et la dispersion dans l’atmosphère d’un panache de gaz nobles radioactifs suite à une explosion nucléaire souterraine. Source : [www.ctbto.org](http://www.ctbto.org).

induites par l’explosion, les gaz nobles vont être soit remis instantanément à l’atmosphère soit diffuseront de la cavité vers l’atmosphère à travers la roche sous l’effet du « pompage » barométrique ; dans ce cas on parlera de rejet retardé (voir figure 4). Cela fut le cas lors de l’essai nucléaire nord-coréen du 13 février 2013, dont les rejets retardés ont été mesurés (voir Ringbom *et al.* (2014), environ  $1000 \text{ atomes.m}^{-3}$  en  $^{131m}\text{Xe}$ , 54 jours après l’explosion

initiale par la station gaz rares japonaise de Takasaki. Il est généralement admis, notamment sur la base du retour d'expérience des explosions nucléaires nord-coréennes de 2006, 2009 et 2013, que la quantité de radioxénons (gaz rares mesurés dans le cadre du TICE) potentiellement rejetée dans l'atmosphère est très faible (au mieux quelques pourcents de la quantité produite dans la cavité). Les gaz rares rejetés à l'atmosphère vont ensuite subir une importante dilution atmosphérique pendant leur transport avant d'être mesurés par une station du TICE. A titre d'exemple un rejet dans l'atmosphère, pendant 6 heures, de  $10^{13}$  Bq de  $^{133}\text{Xe}$  (correspondant à 10 % de la quantité produite lors d'un essai nucléaire de 1 kt), conduira du fait de la dilution atmosphérique à un signal de l'ordre de  $5 \cdot 10^{-4}$  Bq.m $^{-3}$  mesuré par une station TICE placée à 1000 km du point d'émission (cas de la station TICE japonaise de Takasaki l'une des plus proche du site d'essai nord-coréen). Ces signaux très faibles (de l'ordre des limites de détection actuelles des stations gaz rares du SSI) peuvent aussi être interférés par les signatures propres aux rejets de radioxénons d'origine civile dans l'atmosphère, de plus en plus importants. En particulier, les centrales de production d'électricité et surtout les usines de radio-isotopes médicaux (voir Saey (2009)) peuvent rejeter jusqu'à  $10^{13}$  Bq/jour de radioxénons. Ces rejets risquent de masquer un panache de radioxénons causé par une éventuelle explosion nucléaire. Une méthode de discrimination basée sur les rapports isotopiques des 4 radioxénons permet d'identifier l'origine d'un rejet (voir Kalinowski *et al.* (2010)). C'est pourquoi, la mesure précise et sans ambiguïté des 4 isotopes du xénons est nécessaire. Actuellement, les systèmes de mesures du SSI mettent en œuvre : (i) des mesures par coïncidences photon/électron à basse résolution en énergie (photon -mesuré par un scintillateur inorganique-, et électron -mesuré par un scintillateur plastique-) ou (ii) des mesures d'émission de photon  $\gamma$  à haute résolution. Les mesures de coïncidences à basse résolution nécessitent des algorithmes complexes pour extraire les informations pertinentes concernant les radioxénons métastables. Tandis que les mesures d'émissions  $\gamma$  à haute résolution ne permettent pas la mesure à bas-niveau de ces deux isotopes, car ces émissions ne sont pas favorables. Les systèmes actuels de détection des radioxénons ne permettent pas d'atteindre des seuils de sensibilités suffisants.

Du fait de rejets potentiels à l'atmosphère très faibles, émis lors d'une explosion nucléaire souterraine (gaz rares ou produits de fission solides en cas de confinement médiocre ou de débordage), d'une dilution considérable durant le transport atmosphérique, et d'un bruit de fond radioxénon civil susceptible de biaiser la signature (issue des rapports isotopiques des différents radioxénons mesurés) d'un essai, il est du plus haut intérêt d'améliorer en priorité l'efficacité des stations gaz rares du SSI, mais aussi celle des stations aérosols ainsi que la capacité d'analyse des laboratoires du TICE. L'objectif majeur est de gagner, à minima, un ordre de grandeur en sensibilité de détection des produits de fission, notamment pour les isotopes métastables du xénon ; il sera ainsi possible dans ce dernier cas d'améliorer drastiquement la justesse des mesures des radioxénons, et donc la justesse des rapports isotopiques, permettant la caractérisation fiable d'un événement nucléaire. Dans ce but il convient de mettre en œuvre des systèmes de détections novateurs, basés sur des technologies avancées permettant la mesure des produits de fission en mode coïncidences haute résolution (photon/photon pour les PF et PA solides, photon/électron pour les radioxénons) à bas bruit de fond radiologique et permettant des rendements

de détection élevés. La conception d'un spectromètre dual à coïncidences photon/photon et photon/électron, basé sur l'utilisation de semiconducteurs, de détecteurs au germanium (mesure des photons) et au silicium (mesure des électrons), permet d'atteindre cet objectif. L'objet de cette thèse réside dans l'étude de la conception optimisée d'un tel spectromètre et dans la compréhension de la physique des interactions photoniques et électroniques propre aux caractéristiques des détecteurs, de leurs environnements et des schémas de désintégration des radionucléides d'intérêt.

# Chapitre 1

## Généralités

### Table des matières

---

<b>1.1</b>	<b>Radioactivité et particules . . . . .</b>	<b>8</b>
	Désintégration et décroissance d'un noyau . . . . .	8
	Réarrangement électronique . . . . .	10
<b>1.2</b>	<b>La mesure de la radioactivité . . . . .</b>	<b>11</b>
1.2.1	Les détecteurs . . . . .	11
1.2.2	Les mesures directes ou en coïncidences . . . . .	12
1.2.3	Les systèmes d'acquisition . . . . .	13
<b>1.3</b>	<b>Les simulations Monte-Carlo . . . . .</b>	<b>13</b>
<b>1.4</b>	<b>Le bruit de fond en mesure de radioactivité . . . . .</b>	<b>14</b>
1.4.1	Quantification du bruit de fond . . . . .	16
	Cas simple : statistique de Gauss . . . . .	19
	Faible taux de comptage : statistique de Poisson . . . . .	20
	Retour sur quelques hypothèses : utilisation de la statistique bayésienne . . . . .	21
1.4.2	Composantes environnementales du bruit de fond . . . . .	22
1.4.3	Blindage . . . . .	28
	Le blindage passif . . . . .	29
	Le blindage actif . . . . .	34
	Le fond Compton : un bruit de fond supplémentaire des détec- teurs HPGe . . . . .	35
<b>1.5</b>	<b>Mesures de radioactivité dans l'environnement . . . . .</b>	<b>37</b>
1.5.1	Les laboratoires de mesure de traces de radioactivité . . . . .	40
1.5.2	Techniques avancées de mesure de radioactivité . . . . .	40
1.5.3	La détection de radionucléides dans le cadre du TICE . . . . .	42
<b>1.6</b>	<b>Problématique . . . . .</b>	<b>48</b>

---

## 1.1 Radioactivité et particules

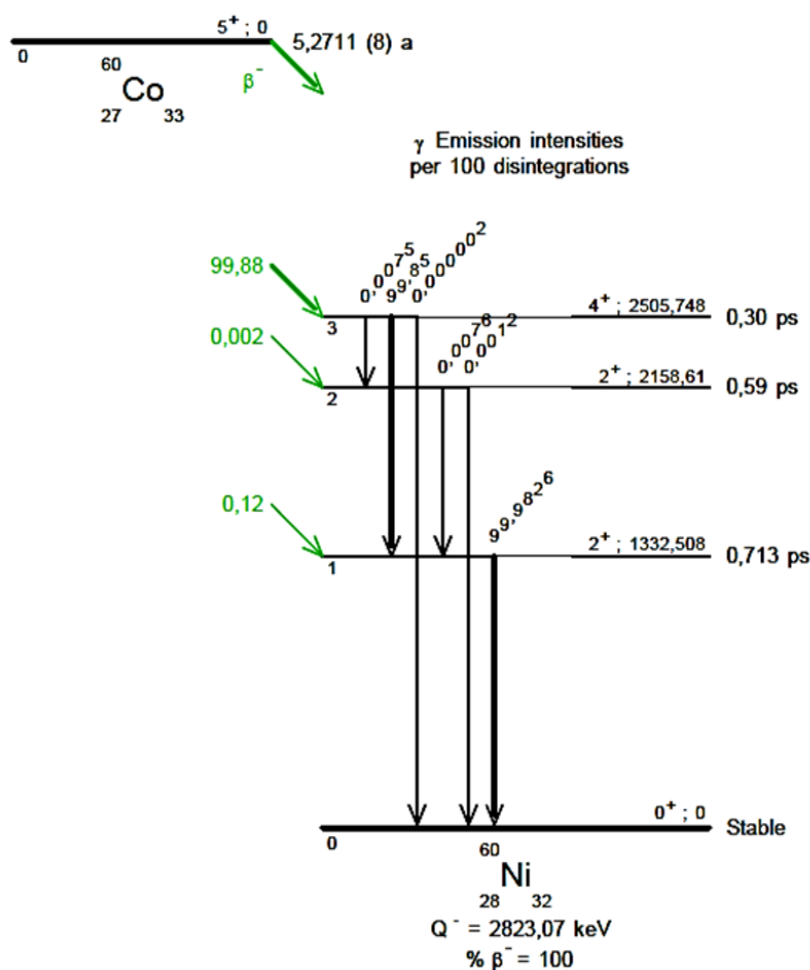
La configuration d'un noyau atomique donné ne correspond pas nécessairement à un état stable de la matière. Ainsi, un noyau est susceptible d'émettre spontanément des particules afin de gagner en stabilité. La radioactivité est le terme générique donné aux mécanismes d'émission de particules par un noyau instable. Elle a été découverte à la fin du XIX<sup>ième</sup> siècle par Henri Becquerel (pour l'uranium) et Marie Curie (pour le radium). On appelle radionucléide tout noyau instable. L'ensemble des radionucléides d'un même élément chimique sont des radio-isotopes. Un radionucléide est caractérisé par un numéro atomique  $Z$  et un nombre de masse  $A$ .

### Désintégration et décroissance d'un noyau

La radioactivité d'un radionucléide lui est spécifique. Elle est caractérisée par un temps de période et un schéma de décroissance propre décrivant l'enchaînement des mécanismes d'émission de particules qui le conduisent à un état plus stable. Cet état correspond à son (ou ses) radionucléide(s) fils. Un radionucléide et son radionucléide fils peuvent être de  $Z$  identiques, et l'atome correspondant passe alors d'un radio-isotope à un autre (ce qui est toujours le cas lors de la décroissance des radionucléides métastables) ; ou de  $Z$  différents, l'atome considéré passe alors d'un élément chimique à un autre. Ces radionucléides fils peuvent également être radioactifs. Le schéma de désintégration du  $^{60}\text{Co}$  vers le  $^{60}\text{Ni}$  est donné à titre d'exemple en figure 1.1.

Les mécanismes d'émission de particules qui traduisent la désintégration d'un radionucléide sont des phénomènes de nature aléatoire qui suivent une statistique binomiale. Ces mécanismes d'émission sont variés. Les plus courants sont :

- La décroissance  $\alpha$  : ce mécanisme correspond à l'émission d'une particule  $\alpha$  (un noyau d'hélium 4). La particule  $\alpha$  est porteuse d'une énergie cinétique de quelques mégaélectron-volts (ou MeV). Parce qu'elle est chargée négativement et a une masse importante, une particule  $\alpha$  a parcours moyen dans la matière très court (de quelques micromètres dans un solide à quelques centimètres dans un gaz).
- La décroissance  $\beta$  (+ ou -) : ce mécanisme correspond à l'émission simultanée par le noyau d'un électron et d'un antineutrino (pour la décroissance  $\beta^-$ ) ou d'un positron et d'un neutrino (pour la décroissance  $\beta^+$ ). Le spectre d'émission en énergie des particules  $\beta$  d'un radionucléide est continu. L'énergie libérée par le noyau lors de



**Figure 1.1** – Schéma de décroissance du  $^{60}\text{Co}$ , selon Chisté *et al.* (2014).

la décroissance se partage entre l'électron (ou le positron), l'antineutrino (ou le neutrino) et le recul (très faible) du noyau.

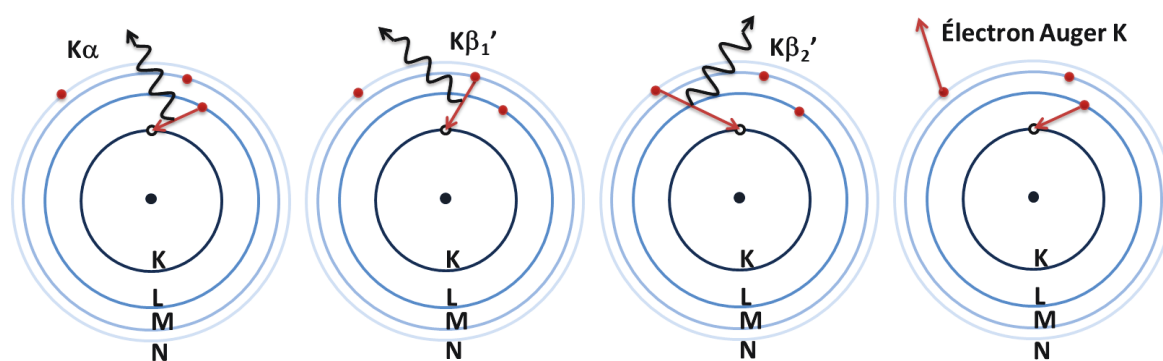
- L'émission de photons  $\gamma$  a lieu lorsqu'un noyau passe d'un état nucléaire à un autre, sans perte de matière. L'émission de photons  $\gamma$  est souvent consécutive à une décroissance  $\beta$ ,  $\alpha$  ou à la décroissance d'un noyau métastable. Les radionucléides les plus courants émettent des photons  $\gamma$  entre quelques keV et quelques MeV.

Ces trois mécanismes correspondent à une décroissance n'impliquant que le noyau d'un atome. Il existe des interactions entre le noyau et le cortège électronique d'un atome qui génèrent des compétitions entre ces mécanismes. On retiendra principalement que :

- La décroissance  $\beta^+$  est en compétition avec le mécanisme de capture électronique : au lieu d'émettre un positron selon la réaction  $^A_Z X \rightarrow ^A_{Z-1} Y + e^+ + \nu_e$ , le noyau peut capturer un électron du cortège électronique qui l'entoure selon la réaction  $^A_Z X + e^- \rightarrow ^A_{Z-1} Y + \nu_e$ . Cet électron est majoritairement capturé à partir de la couche K du cortège électronique (la plus proche du noyau), mais la capture d'électrons provenant de couches L, M ou N est aussi possible (bien que moins probable).
- L'émission de photons  $\gamma$  est en compétition avec le mécanisme de conversion interne : au lieu d'émettre un photon, un noyau peut transmettre son excédent d'énergie à un

électron (appelé électron de conversion et noté CE) du cortège électronique qui l'entoure. Cet électron est alors expulsé et possède une énergie cinétique correspondant à la différence entre l'énergie de la transition nucléaire considérée et l'énergie de liaison de l'électron. La conversion interne a le plus souvent lieu avec des électrons de la couche K (on parle alors de K-CE). Mais une conversion électronique peut aussi impliquer un électron issu de la couche L (L-CE), M (M-CE) et plus rarement de la couche N (N-CE).

### Réarrangement électronique



**Figure 1.2** – Schéma d'un réarrangement électronique de couche K. Les émissions de photon K-X sont regroupées en trois catégories :  $K\alpha$  (correspondant aux raies atomiques  $K\alpha_1$  et  $K\alpha_2$ ),  $K\beta'_1$  (correspondant aux raies atomiques  $K\beta_1$ ,  $K\beta_3$  et  $K\beta_5$ ) et  $K\beta'_2$  (correspondant aux raies atomiques  $K\beta_2$  et  $K\beta_4$ ). Une émission d'électron Auger K est représentée lorsque l'électron éjecté provient de la couche N, mais ces émissions existent aussi pour des électrons éjectés des couches L ou M.

La capture et la conversion électroniques sont deux phénomènes qui laissent une vacance dans une des couches électroniques de l'atome. Cela génère automatiquement un réarrangement électronique, c'est-à-dire un remaniement de la répartition des électrons dans les couches électroniques, ayant pour conséquence l'émission de photons X (fluorescence X) et/ou d'électrons Auger. Par exemple, dans le cas d'un réarrangement électronique de couche K (comme illustré en figure 1.2), la vacance électronique de couche K est comblée par un électron de couche supérieure (L, M ou N). L'énergie libérée par une telle transition est alors émise soit :

- sous la forme d'un photon lors d'une fluorescence X (appelé photon de fluorescence X). Ce photon de fluorescence X est noté  $K\alpha$  si l'électron de couche supérieure provient de la couche L,  $K\beta'_1$  si l'électron de couche supérieure provient de la couche M, et  $K\beta'_2$  si l'électron de la couche supérieure provient de la couche N. Par raccourci, ces photons sont notés simplement  $K\alpha$ -X,  $K\beta'_1$ -X ou  $K\beta'_2$ .
- sous la forme d'un électron par effet Auger (appelé électron Auger).

Ces émissions sont caractéristiques de l'élément chimique considéré. Ainsi, pour chaque élément, les énergies de ces radiations et leurs rendements sont tabulés, cf. Chisté *et al.* (2014).

D'autres mécanismes d'émission de particules moins courants ou non nécessaires à ce travail existent mais ne seront pas détaillés dans ce travail. Parmi eux, on retrouve des mécanismes connus tels que la fission spontanée (division du noyau en deux noyaux plus légers accompagnées de l'émission de neutrons), la décroissance  $\beta\beta$ , etc.

## 1.2 La mesure de la radioactivité

### 1.2.1 Les détecteurs

Dans ce travail deux types de détecteur de radioactivité sont utilisés : les détecteurs à scintillation solide et les détecteurs à semi-conducteur. Les caractéristiques de fonctionnement de ces détecteurs sont rappelées ci-dessous. Une description complète est donnée dans Knoll (2010), et plus particulièrement dans Vetter (2007) et Gilmore (2008) pour les détecteurs à semi-conducteur au germanium.

Les détecteurs à scintillation solide sont constitués de deux blocs opérationnels : un matériau scintillant et un tube photo-multiplicateur. Le matériau scintillant a pour particularité d'émettre des photons (dans l'ultraviolet ou le visible) lorsqu'une particule ionisante le traverse. Ces photons sont ensuite guidés vers le tube photo-multiplicateur. Ce dernier, couplé à un préamplificateur, génère un pic de tension proportionnel au nombre de photons collectés. Il existe deux types principaux de matériaux scintillants : les scintillateurs organiques (liquides ou solides) et les scintillateurs inorganiques.

Les détecteurs à semi-conducteur sont le plus communément fabriqués à base de germanium ou de silicium ultra-pur. On parle aussi de diode semi-conductrice (au silicium ou au germanium). Une tension de polarisation est appliquée au matériau considéré. Lorsqu'une particule traverse le matériau, elle fait passer des électrons de la bande de valence à la bande de conduction. Ces charges sont ensuite collectées sur l'électrode de polarisation du matériau. La tension de polarisation d'un semi-conducteur dépend des caractéristiques (composition, dimensions) du matériau à polariser. Il est fréquent (mais pas systématique) que ces détecteurs soient refroidis : à l'azote liquide ou par couplage acoustique pour les détecteurs au germanium, à l'azote liquide ou par module Peltier pour les détecteurs au silicium. Par rapport aux détecteurs à scintillation, les détecteurs à semi-conducteur présentent une meilleure résolution en énergie (dans des plages d'énergie similaires), mais ils sont aussi plus onéreux, plus fragiles et ont un rendement de détection photonique plus faible.

Pour ces deux types de détecteur, la notion de "zone morte" est importante. La zone morte correspond à une partie inactive du volume de détection (*i.e.* le cristal de germanium, la matériau scintillant, etc...). Il s'agit par exemple pour un cristal de germanium



Détecteur	Type	Durée caractéristique d'un pic de collection de charge	Résolution	Coût	Robustesse
HPGe	Semi-conducteur	$2 \mu s$	++	--	--
Silicium	Semi-conducteur	$1 \mu s$	++	--	+
NaI(Tl)	Scintillateur inorganique	200 ns	-	+	+
CsI	Scintillateur inorganique	$1 \mu s$	+	-	+
BGO	Scintillateur inorganique	300 ns	-	+	+
EJ-200	Scintillateur organique	100 ns	--	++	++
BC 404	Scintillateur organique	2,4 ns	--	++	++

**Tableau 1.1** – Caractéristiques de fonctionnement de différents détecteurs de particules. ++/+/+/-/-- sont des graduations (décroissantes) de qualités. Les informations relatives à la résolution, au coût et à la robustesse des détecteurs sont données à titre indicatif puisqu'elles dépendent des caractéristiques géométriques des détecteurs considérés et des applications particulières que l'on en fait.

d'une zone où le champ créé par la tension de polarisation est trop faible pour permettre une collection des charges qui y sont créées, ou alors les zones de contact électriques. Les zones mortes d'un détecteur sont responsables d'une perte de rendement de détection ou de déformation du signal de détection. Chaque technologie de mesure possède une définition spécifique de ses zones mortes. Pour un détecteur à scintillation, une zone morte est une zone du matériau dans laquelle la collection des photons n'est pas optimale. Alors que pour un matériau semi-conducteur, c'est une zone du matériau dans laquelle la collection des électrons n'est pas optimale.

Les caractéristiques basiques des différents détecteurs rencontrés sont synthétisées dans le tableau 1.1.

### 1.2.2 Les mesures directes ou en coïncidences

La spectrométrie d'un échantillon consiste à mesurer (durant une durée  $T_{acq}$ ) son spectre d'émission en énergie à l'aide d'un détecteur. Les résultats de cette mesure sont présentés sous forme d'histogrammes.

Des mesures plus fines peuvent être effectuées en utilisant plusieurs détecteurs simultanément en définissant une fenêtre temporelle de coïncidence (notée  $T_{coinc}$ ). On parle alors de mesures (i) en coïncidence si on mesure les événements détectés avec au moins deux détecteurs pendant  $T_{coinc}$ ; (ii) ou en anti-coïncidence si la mesure d'un événement dans un des détecteurs bloque la mesure dans un ou plusieurs autres détecteurs pendant  $T_{coinc}$ .

Les mesures directes sont en premier lieu abordées dans le Chapitre 2, alors que le Chapitre 3 est dédié aux mesures en coïncidence.

### 1.2.3 Les systèmes d'acquisition

Classiquement, les chaînes d'acquisition et de traitement des signaux utilisées en spectrométrie des particules sont de type "analogiques". Elles sont constituées en sortie de signal d'une suite de modules électroniques, parmi lesquels : un préamplificateur, un amplificateur de spectrométrie et un convertisseur analogique-numérique. Le fonctionnement et le réglage de ces modules électroniques sont décrits dans les livres Knoll (2010) et Gilmore (2008).

Les derniers développements en électronique, tels que l'augmentation de la fréquence d'échantillonnage des convertisseurs analogique-numérique et l'augmentation des capacités des puces FPGA (Field-Programmable Gate Array), ont permis la mise au point de systèmes d'acquisition et de mise en forme numérique des signaux. La conversion du signal analogique en un signal numérique s'effectue alors directement après le préamplificateur par une carte de traitement. Des filtres numériques permettent d'extraire de ce signal les informations relatives à la radioactivité de l'échantillon. Il existe différentes sortes de filtres numériques applicables aux détecteurs de radioactivité, dont certains sont présentés dans Jordanov *et al.* (1994), Menaa *et al.* (2011) et Knoll (2010). Ces développements ainsi que des développements en informatique (augmentation de la rapidité de traitement, du débit de communication des interfaces et des espaces de stockage), ont permis l'émergence d'un nouveau type d'acquisition : le mode liste (ou listmode en anglais).

L'acquisition en mode liste consiste à enregistrer successivement l'ensemble des informations relatives à chaque événement d'intérêt détecté sur une des voies d'entrée de la carte d'acquisition. Les informations relatives à un événement d'intérêt sont multiples. Parmi celles-ci on retrouve par exemple : l'instant de détection de cet événement ; son amplitude, la forme du pic, la voie d'enregistrement de cet événement (si une carte gère plusieurs voies d'acquisition en parallèle) et la détection simultanée ou non d'événement.

Un fichier d'acquisition en mode liste répertorie temporellement l'ensemble des informations relatives aux événements d'intérêt. Il n'est pas exploitable tel quel, mais son analyse permet un traitement approfondi et facilité des mesures : en coïncidences/anticoïncidences sur des échelles de temps variables, en coïncidences décalées, pour l'étude des formes de pic, pour la relecture temporelle des acquisitions, etc.

En particulier le spectromètre GAMMA<sup>3</sup> est équipé de chaînes d'acquisition analogique et numérique. La chaîne d'acquisition numérique sera détaillée par la suite.

## 1.3 Les simulations Monte-Carlo

Avant de générer un signal dans un détecteur, une particule peut traverser plusieurs couches successives de matériaux différents. Chacune de ces couches peut modifier l'état de la particule et donc le signal qu'elle va générer dans le détecteur. Mais les processus

d'interaction de cette particule avec un milieu donné sont complexes et en compétition les uns avec les autres. Il n'existe pas d'équation simple décrivant le transport de cette particule jusqu'à la partie sensible du détecteur, en revanche plusieurs codes de simulation Monte-Carlo développés en physique des particules et en physique nucléaire permettent de modéliser ce transport.

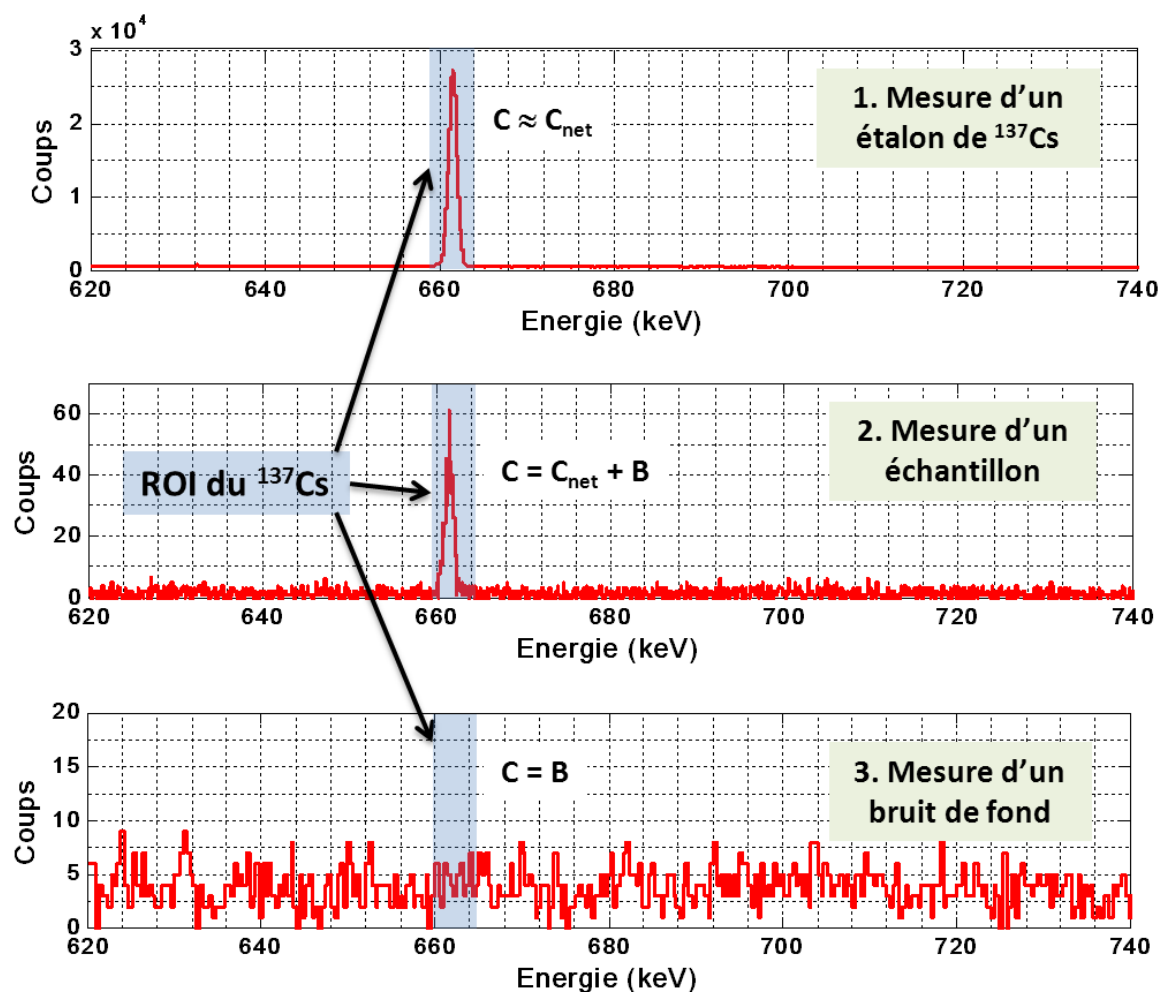
Les codes de simulation Monte-Carlo les plus courants sont : (i) FLUKA (cf. Battistoni *et al.* (2007)), (ii) GEANT4 (cf. Agostinelli *et al.* (2003)), (iii) MCNP (cf. Pelowitz *et al.* (2011)), et (iv) PENELOPE (cf. Salvat *et al.* (2001)). Plusieurs études se sont intéressées entre autres à la validation de ces codes, parmi lesquelles celles de Kudryavtsev *et al.* (2008), de Chazal *et al.* (2002), ou encore de Vidmar *et al.* (2008). Étant complet et libre de licence, le code GEANT4 a été utilisé pour effectuer les simulations Monte-Carlo associés à cette thèse. Afin d'utiliser simplement une version installée et opérationnelle de GEANT4, des machines virtuelles Scientific Linux ont été utilisées. Ces machines virtuelles sont distribuées par le Centre d'Etude Nucléaire de Bordeaux Gradignan (CENBG, Incerti *et al.* (2010)) et les versions 9.6 ou 10.01 de GEANT4 y sont installées.

Le code GEANT4 est utilisé dans de nombreux domaines faisant intervenir les interactions particules/matière, tels que la physique des hautes énergies, les sciences médicales, l'astrophysique, la radioprotection, etc. En spectrométrie, les simulations Monte-Carlo sont utilisées pour prédire la réponse d'un spectromètre, (i) soit à la source ou à l'échantillon que l'on cherche à mesurer pour l'étude des rendements de détection (voir par exemple Sima et Arnold (2009)), (ii) soit à une source parasite pour l'étude des interférents à la mesure (ou le bruit de fond, voir paragraphe suivant).

L'outil de simulation Monte-Carlo est couramment utilisé, mais il comporte certaines limitations non négligeables. Ainsi lors de la modélisation Monte-Carlo d'une mesure nucléaire, les sources d'erreurs courantes sont imputables à :

- la méconnaissance des zones mortes et des parties sensibles des détecteurs ;
- la connaissance imparfaite des matériaux constituant le détecteur (l'utilisation d'un matériau pur, ou d'un alliage peut changer drastiquement l'absorption des photons de basse énergie) ;
- la connaissance imparfaite de la composition ou de la géométrie d'un échantillon à mesurer (composition et forme d'une roche, composition d'un gaz, répartition des sources émettrices de radioactivité dans l'échantillon) ;
- un biais des générateurs de nombres aléatoires ;
- les approximations des théories physiques considérées par la simulation.

Enfin, lors d'une simulation (telle que celles effectuées pour ce travail de thèse) les fonctions de transfert électroniques des instruments ne sont pas prises en compte.



**Figure 1.3** – Trois histogrammes de mesures d'émission  $\gamma$  sur un spectromètre HPGe. 1. : mesure d'un étalon de  $^{137}\text{Cs}$  pendant 55000 s. 2. : mesure d'un échantillon faiblement actif en  $^{137}\text{Cs}$  pendant 250000 s. 3. : mesure d'un bruit de fond pendant 260000 s. La zone ombragée bleue correspond à la région d'intérêt (*ROI*) du  $^{137}\text{Cs}$ . Dans cette *ROI* : le comptage est très largement dominé par des événements attribuables au  $^{137}\text{Cs}$  (i.e.  $C \approx N$ ) lors de la mesure d'un étalon (histogramme 1), le comptage est attribuable uniquement à des événements de bruit de fond radioactif (i.e.  $C = B$ ) lors d'une mesure de bruit de fond (histogramme 3). Enfin, le comptage est conjointement attribuable aux événements de bruit de fond et à l'échantillon lors de la mesure d'un échantillon faiblement actif (histogramme 2).

## 1.4 Le bruit de fond en mesure de radioactivité

La notion de région d'intérêt (*ROI*) en spectrométrie est importante. Une *ROI* est une plage d'énergie donnée (un segment sur un spectre direct, une surface sur un spectre à 2 dimensions, etc) représentative des émissions d'un radionucléide. La notion de *ROI* est illustrée en figure 1.3. Sur cette figure, les spectres issus de trois mesures d'un spectromètre à bas bruit de fond équipé d'un détecteur HPGe sont présentés. Pour tout type de mesure, l'analyse d'une mesure commence par le comptage des impulsions relevées par le système

de détection dans des *ROI*. Ce comptage (noté  $C$ ) est la somme de deux composantes :

- le signal attribuable à l'échantillon, appelé comptage net et noté  $C_{net}$  ;
- le signal attribuable au bruit de fond, noté  $B$ .

La mesure sans échantillon, ou avec un échantillon non-actif, d'un spectromètre est appelée bruit de fond de mesure, ou blanc. Pour un spectromètre donné une telle mesure permet d'obtenir le comptage  $B$  des *ROI*. L'étude et la compréhension des bruits de fond de mesure sont fondamentales pour les mesures de traces de radioactivité. En effet, pour un radionucléide particulier, si le bruit de fond est plus élevé que le niveau de radioactivité détecté par le spectromètre pour ce radionucléide, la présence de ce dernier est alors masquée.

Afin de quantifier ces notions, différents indicateurs mathématiques ont été définis (cf. Currie (1995) et norme ISO 11929), parmi lesquels : le seuil de décision et la limite de détection (notés respectivement  $S_D$  et  $L_D$ ) dans une *ROI* donnée. Le paragraphe suivant s'intéresse au calcul de ces indicateurs.

### 1.4.1 Quantification du bruit de fond

Le seuil de décision ( $S_D$ ) est défini de façon à ce que le comptage net dans une *ROI* soit : (i) inférieur à ce seuil si ce comptage est caractéristique des fluctuations du bruit de fond ; ou (ii) supérieur à ce seuil si ce comptage est caractéristique d'une activité particulière.  $S_D$  est un nombre de coups déterminé *a posteriori* d'une mesure. La limite de détection ( $L_D$ ) est un nombre fixé *a priori* d'une mesure correspondant au comptage net minimum dans une *ROI* garantissant la détection d'une activité. Les deux notions sont très différentes d'un point de vue statistique.

En terme de comptage, la désintégration radioactive est un phénomène aléatoire qui suit une loi de probabilité binomiale. Cette loi de probabilité répond à la question : "durant un temps d'observation donné  $T_{acq}$ , quelle est la probabilité  $P(n)$  pour que  $n$  atomes parmi les  $N$  présents dans un échantillon se soient désintégrés ?". Si on note  $p$  la probabilité pour qu'un atome se désintègre (avec  $t_{1/2}$  sa période radioactive), on a :

$$p = (1 - e^{-\ln(2)T_{acq}/t_{1/2}}) ; \quad (1.1)$$

et

$$P(n) = \frac{N!}{n!(N-n)!} p^n (1-p)^{N-n}. \quad (1.2)$$

Avec l'hypothèse que  $p \ll 1$ , qui est valide lorsque le temps d'observation est court devant la période du radionucléide considéré, la distribution binomiale peut être approximée par une distribution de Poisson. En spectrométrie on ne connaît pas *a priori* la valeur de  $N$ . Le problème peut être reformulé ainsi : "sur un nombre très grand d'expériences de mesure observant en moyenne  $m$  coups de désintégration du radionucléide  $X$ , quelle

est la probabilité pour que, lors d'une observation d'une durée  $T_{acq}$ ,  $n$  atomes de  $X$  aient décro ?". L'équation 1.2 devient ainsi :

$$P(n) = \frac{m^n}{n!} e^{-m}. \quad (1.3)$$

où  $m = pN$  est ici, par définition d'une distribution de Poisson l'espérance mathématique et la variance de la distribution des coups  $\{n\}$ .

Enfin, si le nombre moyen de coups est *suffisamment grand*, ce qui est considéré comme vrai lorsque  $m > 30$  (cf. Knoll (2010)), la statistique de Poisson peut être très correctement approximée par une statistique de Gauss, et sa fonction de probabilité suit alors la loi normale. L'équation 1.3 donnant la probabilité de distribution (continue) des coups  $\{n\}$  devient alors :

$$P(n) = \frac{1}{m\sqrt{2\pi}} e^{-\frac{[n-m]^2}{2m^2}}. \quad (1.4)$$

On remarque qu'à ce stade le rendement de détection du rayonnement n'intervient pas mathématiquement au niveau de l'équation 1.1. Or s'il doit être pris en compte, c'est au niveau de l'écriture de cette équation. Telle qu'elle est écrite ci-dessus, cette équation donne la probabilité pour qu'un atome se soit désintégré. Si on note  $\epsilon$  le rendement de détection du rayonnement de l'atome considéré, la probabilité pour qu'il soit détecté durant le temps de mesure imparti est  $p_{détecté} = \epsilon p$ , ou encore :

$$p_{détecté} = \epsilon(1 - e^{-\ln(2)T_{acq}/t_{1/2}}). \quad (1.5)$$

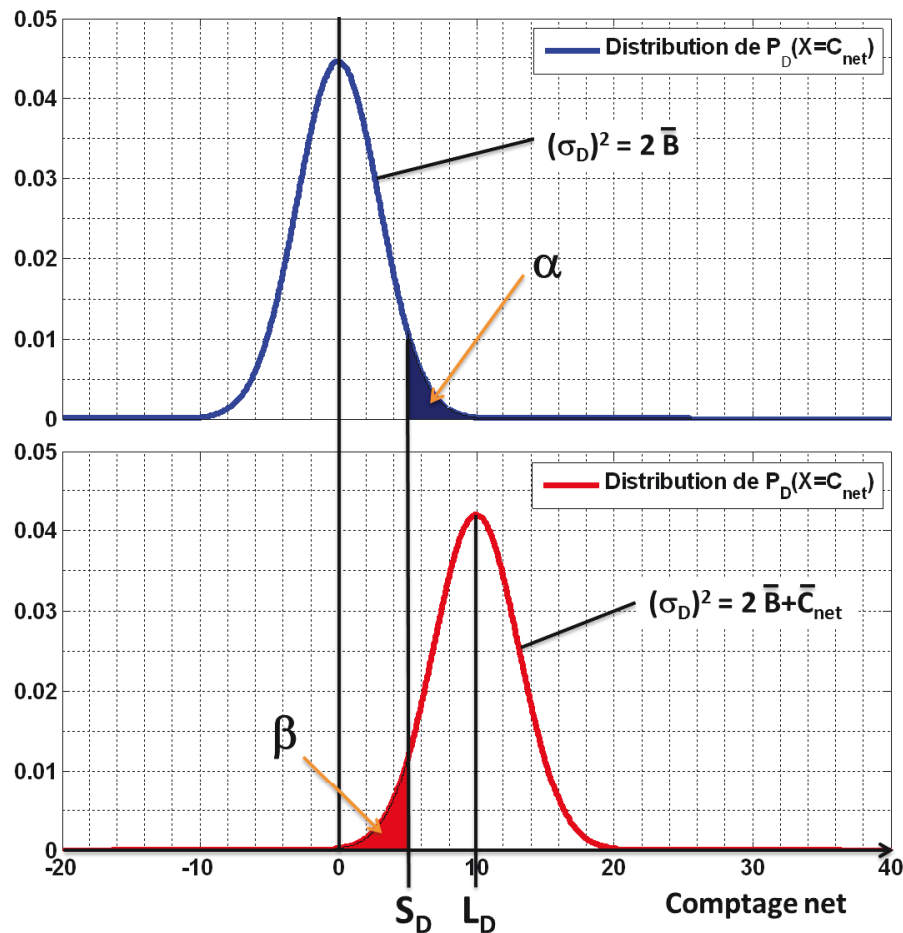
Dans le cas d'un radionucléide  $X$  ayant une période *courte*, l'approximation en loi de Poisson donnant l'équation 1.3 lors d'une mesure *longue* (vis-à-vis de la période de  $X$ ) est très contestable puisque dans ce cas  $p \rightarrow 1$ . Cependant, on verra par la suite que les rendements de détection des spectromètres étudiés sont faibles. Les rendements de détection en coïncidence sont encore plus faibles puisque ces mesures nécessitent plusieurs détections simultanées. Au vu de l'équation 1.5, ces considérations imposent généralement que dans la plupart des cas rencontrés (même pour les radionucléides ayant des périodes courtes devant la durée d'acquisition),  $p_{détecté} \ll 1$ . Cela nous permet d'affirmer que pour les mesures de radioactivité étudiées, les variables aléatoires de comptage considérées suivent une statistique de Poisson.

Comme expliqué en introduction de cette partie, le comptage mesuré  $C$  dans une *ROI* est égal à la somme de deux variables aléatoires :  $C = C_{net} + B$ , où  $C_{net}$  est le comptage net (*i.e.* le comptage attribuable au radionucléide que l'on cherche à mesurer) et où  $B$  est le nombre de coups attribuable au bruit de fond.

On considère que le taux de comptage du bruit de fond d'une *ROI* donnée (noté  $b$ ) est constant. Ainsi, pour une mesure donnée dont la durée d'acquisition est  $T_{acq}$ , le comptage issu du bruit de fond  $B$  s'écrit  $B = bT_{acq}$ . Le taux de comptage de bruit de fond est

obtenu sur une mesure de bruit de fond suffisamment longue, c'est à dire plus longue que les durées d'acquisition lors des mesures d'échantillons.

Cette approximation est discutable car certains cas de figure ne vérifient pas ce point. Par exemple, nous verrons par la suite que certains isotopes fils du radon sont radioactifs et génèrent du bruit de fond. Or le taux de radon varie dans le temps, et ses interférences aussi.



**Figure 1.4** – Représentation des fonctions de distribution du comptage net ( $P_D(X = C_{net})$ ) dans une *ROI* donnée, dans le cas où : (i) courbe bleu, aucune radioactivité n'est détectable dans la *ROI* (dans ce cas  $\overline{C_{net}} = 0$  et  $\overline{B} = 80$ ), et (ii) courbe rouge, une radioactivité détectable dans la *ROI* est présente (mais à la limite de détection de risque  $\beta$ , ainsi  $\overline{C_{net}} = L_D = 10$  et  $\overline{B} = 80$ ).

Les variables aléatoires  $C$ ,  $B$  et  $C_{net}$  ont chacune leur propre statistique (et donc leur propre loi de probabilité). On note  $\sigma_C$ ,  $\sigma_B$  et  $\sigma_D$  leurs écarts-types ;  $\overline{C}$ ,  $\overline{B}$  et  $\overline{C_{net}}$  leurs espérances mathématiques respectives ; et  $P_D(X = C_{net})$  la fonction de distribution du comptage net. On définit :

- le risque  $\alpha$ , associée au seuil de décision ( $S_D$ ), est le risque toléré de "vrais négatifs". Le seuil de décision est la valeur de  $C_{net}$  à partir de laquelle il y a  $\alpha$  % de chance

pour que ce comptage ne soit pas causés par l'échantillon. Le seuil de décision permet d'affirmer si, dans la *ROI* considérée, une radioactivité supérieure au bruit de fond est significativement détectée. Mathématiquement,  $S_D$  est le plus grand des  $n$  vérifiant l'équation 1.6, lorsqu'il n'y a aucune radioactivité à mesurer (*i.e.*  $\overline{C_{net}} = 0$ , cf. spectre bleu sur la figure 1.4) :

$$1 - \alpha \geq \sum_{C_{net}=-\infty}^n P_D(X = C_{net}) ; \quad (1.6)$$

- le risque  $\beta$ , associée à la limite de détection ( $L_D$ ), est le risque toléré de "faux positifs". Ainsi, la limite de détection est le comptage net minimal dans la *ROI* attribuable à un radionucléide sans que celui-ci soit déclaré comme significativement détecté.  $L_D$  est la plus petite des espérances mathématiques (*i.e.* des  $\overline{C_{net}}$ ) des distributions de comptages nets vérifiant l'équation 1.7 ci-dessous (cf. spectre rouge sur la figure 1.4) :

$$1 - \beta \leq \sum_{C_{net}=S_D}^{+\infty} P_D(X = C_{net}) ; \quad (1.7)$$

En connaissant ces fonctions de distribution on obtient les expressions donnant les valeurs de  $S_D$  et  $L_D$  selon le cas de figure considéré à partir d'une mesure de bruit de fond.

### Cas simple : statistique de Gauss

Dans le cas où  $C$  et  $B$  suivent une statistique de Gauss, leurs distributions suivent une loi normale (ce qui est considéré comme acquis lorsque  $\overline{B} > 30$ ). Ainsi, par propriété d'additivité de la loi normale, la variable aléatoire  $C_{net}$  suit elle aussi une loi normale. Et :

$$p_D(X = C_{net}) = \frac{1}{\sigma_D \sqrt{2\pi}} e^{-\frac{(C_{net} - \overline{C_{net}})^2}{2\sigma_D^2}}. \quad (1.8)$$

Où (parce que  $C$  et  $B$  suivent une statistique de la loi normale) :  $\sigma_D^2 = \sigma_C^2 + \sigma_B^2$  et  $\overline{C_{net}} = \overline{C} - \overline{B}$ . De plus, comme ces fonctions de distributions sont issues d'approximation d'une statistique de Poisson, les écart-types sont égaux aux espérances mathématiques, et ainsi :  $\sigma_B^2 = \overline{B}$ ,  $\sigma_C^2 = \overline{C_{net}} + \overline{B}$  et :

$$\sigma_D^2 = \overline{C_{net}} + 2\overline{B} \quad (1.9)$$

L'inéquation 1.6 donnant  $S_D$  lorsque  $\overline{C_{net}} = 0$  s'écrit dans ce cas :

$$1 - \alpha = \int_{-\infty}^{S_D} p_D(X = C_{net}) dC_{net}. \quad (1.10)$$

Or les coefficients  $k_{1-\alpha}$  permettant d'inverser ce genre d'équation dans le cas d'une distribution de probabilité gaussienne sont tabulés, et ainsi :

$$\overline{C_{net}} + S_D = k_{1-\alpha} \sigma_D ; \quad (1.11)$$



Et avec l'équation 1.9, dans le cas où  $\overline{C_{net}} = 0$ , l'équation 1.11 s'écrit :

$$S_D = k_{1-\alpha} \sqrt{2\overline{B}} ; \quad (1.12)$$

De même pour le calcul de  $L_D$ , l'inéquation 1.7 s'écrit :

$$1 - \beta = \int_{S_D}^{+\infty} p_D(X = C_{net}) dC_{net}. \quad (1.13)$$

Et les coefficients  $k_{1-\beta}$  permettant d'inverser cette équation sont tabulés. Ainsi :

$$\overline{C_{net}} - S_D = k_{1-\beta} \sigma_D. \quad (1.14)$$

Or dans ce cas,  $\overline{C_{net}} = L_D$ , et avec l'équation 1.9, l'équation ci-dessus s'écrit :

$$L_D - S_D = k_{1-\beta} \sqrt{L_D + 2\overline{B}}. \quad (1.15)$$

ou encore, avec l'équation 1.12 :

$$L_D = k_{1-\alpha} \sqrt{2\overline{B}} + k_{1-\beta} \sqrt{L_D + 2\overline{B}}. \quad (1.16)$$

En pratique, si les risques  $\alpha$  et  $\beta$  sont pris identiques (en notant  $k_{1-\beta} = k_{1-\alpha} = k$ ) l'équation 1.16 a pour solution :

$$L_D = k^2 + 2k \sqrt{2\overline{B}} \quad (1.17)$$

### Faible taux de comptage : statistique de Poisson

Le cas de la loi normale ne s'applique que si le comptage mesurés du bruit de fond est suffisamment élevé (il est généralement acquis qu'il faut avoir  $B > 30$  pour pouvoir appliquer cette approximation). Le comptages  $C$  et de bruits de fonds  $B$  obtenus par des mesures sont dans ce cas deux variables aléatoires de Poisson.  $C_{net} = C - B$  est alors une variable aléatoire suivant une loi de Skellam (cf. Skellam (1946)). Par définition d'une telle loi, L'espérance mathématique de  $C_{net}$  s'écrit alors (comme pour une loi Normale)  $\overline{C_{net}} = \overline{C} - \overline{B}$ , sa variance est  $\sigma_D^2 = \overline{C} + \overline{B}$  et sa fonction de distribution s'écrit :

$$P_D(X = C_{net}) = e^{-(\overline{C} + \overline{B})} \left( \frac{\overline{C}}{\overline{B}} \right)^{C_{net}/2} I_{|C_{net}|} \left( 2\sqrt{\overline{C} \times \overline{B}} \right) \quad (1.18)$$

ou encore en remplaçant  $\overline{C}$  par  $\overline{C_{net}} + \overline{B}$  :

$$P_D(X = C_{net}) = e^{-(\overline{C_{net}} + 2\overline{B})} \left( \frac{\overline{C_{net}} + \overline{B}}{\overline{B}} \right)^{C_{net}/2} I_{|C_{net}|} \left( 2\sqrt{(\overline{C_{net}} + \overline{B}) \times \overline{B}} \right) \quad (1.19)$$

où  $I_{|C_{net}|}$  est la fonction de Bessel modifiée de première espèce dont les valeurs peuvent être obtenues numériquement et qui, pour  $|C_{net}|$  entier, s'écrit :

$$I_{|C_{net}|}(x) = \sum_{i=0}^{\infty} \frac{1}{i!(|C_{net}| + i)!} \left( \frac{x}{2} \right)^{2i + |C_{net}|} \quad (1.20)$$

En utilisant les équations 1.6 et 1.19 dans le cas où  $\overline{C_{net}} = 0$ ,  $S_D$  est le plus grand des  $n$  vérifiant l'inégalité suivante :

$$\sum_{C_{net}=-\infty}^n e^{-2\overline{B}} I_{|C_{net}|}(2\overline{B}) < 1 - \alpha ; \quad (1.21)$$

Enfin,  $L_D$  est le plus petit des  $\overline{C_{net}}$  (entiers) vérifiant :

$$\sum_{C_{net}=S_D}^{+\infty} e^{-(\overline{C_{net}}+2\overline{B})} \left( \frac{\overline{C_{net}} + \overline{B}}{\overline{B}} \right)^{C_{net}/2} I_{|C_{net}|} \left( 2\sqrt{(\overline{C_{net}} + \overline{B}) \times \overline{B}} \right) > 1 - \beta ; \quad (1.22)$$

ou, sous un autre version (qui peut être plus facile à résoudre que l'inégalité 1.22) :

$$\sum_{C_{net}=-\infty}^{S_D-1} e^{-(\overline{C_{net}}+2\overline{B})} \left( \frac{\overline{C_{net}} + \overline{B}}{\overline{B}} \right)^{C_{net}/2} I_{|C_{net}|} \left( 2\sqrt{(\overline{C_{net}} + \overline{B}) \times \overline{B}} \right) < \beta ; \quad (1.23)$$

La résolution des inéquations 1.21 et 1.22 ou 1.23 peut être compliquée. C'est pourquoi il est préférable de se ramener au cas de la statique de la loi Normale si les conditions sont vérifiées.

### Retour sur quelques hypothèses : utilisation de la statistique bayésienne

Les deux cas présentés ci-dessus considèrent que la statistique de  $B$  ou de  $C$  dans la  $ROI$  considérée est connue. En toute rigueur, cela signifie qu'un très grand nombre de mesures de bruit de fond ont été réalisées afin d'obtenir une fonction de distribution représentative du comptage de bruit de fond mesurés dans la  $ROI$  considérée ( $P_B(X = B)$ ). De même, cela suppose qu'un très grand nombre de mesures d'échantillon ont été effectuées afin d'obtenir les fonctions de distribution des  $C$  ( $P_C(X = C)$ ).

En pratique,  $S_D$  est calculé à partir d'une seule mesure de bruit de fond. Et  $L_D$  est calculé directement à partir de ce bruit de fond. L'utilisation de la statistique bayésienne prend en compte l'incertitude liée à l'utilisation d'une seule mesure de bruit de fond et d'une seule mesure d'échantillon pour déterminer  $\overline{C}$  et  $\overline{B}$ . Le détail théorique de l'utilisation de la statistique bayésienne pour le calcul de  $S_D$  est donné dans Vivier et Aupiais (2007). Cette approche est intéressante car elle permet aussi de prendre en compte le gain de précision obtenu sur la valeur de  $\overline{B}$  lorsque plusieurs mesures de bruit de fond sont effectuées. En revanche, l'auteur reconnaît que pour des comptages de bruits de fond supérieurs à 10 coups, les résultats proposés sont très similaires à ceux dérivés de la statistique gaussienne.

Une synthèse des différentes approches est donnée dans le tableau 1.2. Dans ce travail, il est considéré qu'une mesure est suffisante pour déterminer la statistique de  $B$  et  $C$ . Ainsi dans le cas des très faibles taux de comptage, ces deux variables aléatoires sont considérées comme suivant une statistique de Poisson et les  $S_D$  et  $L_D$  seront obtenus par résolution des inéquations 1.21 et 1.22 (ou 1.23). En cas de comptage plus élevé (*i.e.*  $> 30$ ), une statistique gaussienne sera appliquée aux variables  $B$  et  $C$  et les  $S_D$  et  $L_D$  seront obtenus

Statistique du comptage de $C$ et $B$	Seuil de décision
Loi normale	$k_{1-\alpha}\sqrt{2\overline{B}}$
Loi de Poisson	Résolution de l'inéquation 1.21
Approche bayésienne	$k^*\sqrt{2(\overline{B} + 1)}$

**Tableau 1.2** – Comparaison des différents seuils de détection. L'approche bayésienne est obtenue de Vivier et Aupiais (2007). Ici,  $B$  est normalisé au temps d'acquisition d'une mesure d'échantillon, et le seuil de décision est donné en comptage (certains le donnent en taux de comptage).  $k^*$  est obtenu sous l'hypothèse d'une distribution d'une loi normale.

par calculs des équations 1.12 et 1.17, tel que recommandé par le Traité d'Interdiction Complète des Essais nucléaires (TICE, cf. CTBTO (1996)).

### 1.4.2 Composantes environnementales du bruit de fond

Composition du bruit de fond	Taux de comptage intégral correspondant (en $s^{-1}$ )
Radionucléides primordiaux et anthropogéniques autour du spectromètre	30 à 300
Muons cosmiques	0,3 à 2
Neutrons cosmiques (primaires et secondaires)	0,03 à 0,2
Radionucléides primordiaux et anthropogéniques dans le blindage	0,01 à 0,2
Radon et ses descendants	0,01 à 0,1
Radionucléides primordiaux et anthropogéniques dans le détecteur	0,003 à 0,03
Activation du détecteur par les rayons cosmiques	0,0004 à 0,002

**Tableau 1.3** – Ordre de grandeur des taux de comptage des composants du bruit de fond de mesure d'un spectromètre HPGe. Ce spectromètre est installé dans un blindage de 10 cm de plomb et est équipé d'un cristal de germanium de 1 kg (repris de Povinec *et al.* (2008a)).

Le bruit de fond instrumental est généré par une radioactivité dite *environnementale*. Celle-ci a différentes composantes, détaillées par la suite. Les composantes principales de la radioactivité environnementale générant un bruit de fond de mesure sont : 1) la radioactivité provenant de radionucléides primordiaux et anthropogéniques, 2) la radioactivité provenant du radon et de ses descendants, et 3) le flux de particules cosmiques. L'effet relatif en intensité de ces différentes sources de radioactivité environnementale dans le bruit de fond d'un spectromètre HPGe est donné dans le tableau 1.3.

Les radionucléides primordiaux sont des composants naturels de la croûte terrestre. Ces radionucléides sont le  $^{40}\text{K}$ , les  $^{238,235}\text{U}$ , le  $^{232}\text{Th}$  et leurs descendants. Ils sont présents dans

la croûte terrestre depuis la création de la planète et ont donc des périodes extrêmement longues. Leurs concentrations moyennes sont (cf. Heusser (1995)) :  $850 \text{ Bq.kg}^{-1}$  pour le  $^{40}\text{K}$ ,  $44 \text{ Bq.kg}^{-1}$  pour le  $^{232}\text{Th}$  et  $36 \text{ Bq.kg}^{-1}$  pour le  $^{238}\text{U}$ . Le flux total de photons (d'énergie supérieure à  $50 \text{ keV}$ ) émis par le  $^{238}\text{U}$  est d'environ  $10 \text{ photons.cm}^{-2}.\text{s}^{-1}$ . On trouve ces éléments (et leurs descendants) dans les matériaux de construction (tels que le béton, le bois, la pierre, les résines, etc.).

Les principaux radionucléides anthropogéniques sont les  $^{60}\text{Co}$ ,  $^{137}\text{Cs}$  et  $^{90}\text{Sr}$ . Ces deux derniers ont été dispersés à la surface du globe à la suite d'essais nucléaires ou d'accidents nucléaires majeurs, tels que Tchernobyl ou Fukushima. Des traces de ces radionucléides sont mesurables dans de nombreux matériaux. Le  $^{60}\text{Co}$  est quant à lui un contaminant radioactif bien connu de l'acier. Les aciers ayant été manufacturés au début de l'ère industrielle en sont dépourvus, mais les aciers récents peuvent avoir été contaminés durant leur production ou leur recyclage. Cela peut être imputé à la perte et la dissémination de sources (principalement industrielles) dans les aciéries et à l'usure d'instruments de radiographie dans les hauts fourneaux. Afin de diminuer les interférences de ces radionucléides naturels ou anthropogéniques, il est important de tester et de mesurer chacun des composants constituant un spectromètre : structure entourant le matériau sensible de détection (cristal ou plastique scintillant), électronique de mise en forme du signal et éléments d'environnement proche (comme un éventuel support d'échantillon).

La radioactivité provenant du radon et de ses descendants est particulièrement importante et complexe. Le radon est un gaz rare, issu de la désintégration de l'uranium et du thorium. Il est créé dans les roches, la terre ou les matériaux de construction, et il diffuse très facilement à travers les milieux. Sans précautions particulières, il est courant de mesurer dans les souterrains une radioactivité moyenne en  $^{222}\text{Rn}$  de l'ordre de quelques milliers de  $\text{Bq.m}^{-3}$  (cf. Heusser (1995)). Parmi les descendants des  $^{235}\text{U}$ ,  $^{238}\text{U}$  et  $^{232}\text{Th}$ , on trouve respectivement : le  $^{219}\text{Rn}$  (période :  $3,96 \text{ s}$ ), le  $^{222}\text{Rn}$  (période :  $3,82 \text{ jours}$ ) et le  $^{220}\text{Rn}$  (période :  $55,8 \text{ s}$ ). Ces données nucléaires sont tirées de la table des radionucléides (cf. Bé *et al.* (2008)).

La période du  $^{219}\text{Rn}$  est courte, ce qui l'empêche de diffuser depuis son point de production jusqu'au spectromètre de mesure. C'est pourquoi son influence est négligeable. De même, la concentration du  $^{220}\text{Rn}$  dans l'air ne représente que quelques pourcents de celle du  $^{222}\text{Rn}$ . Au final, c'est le  $^{222}\text{Rn}$  et ses descendants qui génèrent la part dominante du bruit de fond.

Les descendants du radon sont généralement chargés positivement et ont tendance à adhérer aux plastiques et aux verres par effet électrostatique (voir par exemple l'étude menée par Turunen *et al.* (2011)).

Les principales émissions ( $\alpha$ , électron et photon) du  $^{222}\text{Rn}$  et de ses descendants sont données dans le tableau 1.4. Ces émissions sont très variées aussi bien en ce qui concerne le type de particules émises que la plage d'énergie qu'elles couvrent. La radioactivité prove-

<sup>222</sup> Rn et ses descendants	Émissions principales				
	$\alpha$	électrons ( $\beta$ et CE)		photons ( $\gamma$ et X)	
<sup>222</sup> Rn (3,8 jours)	[5489 keV ; 99,92 %]	Aucune		Négligeable (< 0,1 %)	
<sup>218</sup> Po (3,1 min)	[6002 keV ; 99,98 %]	Négligeable (< 0,1 %)		Négligeable (< 0,1 %)	
<sup>214</sup> Pb (26,9 min)	aucune	$\beta^-$	[667 keV ; 46,5 %] [724 keV ; 41,1 %] [1019 keV ; 9,2 %]	$\gamma$	[351,9 keV ; 36,6 %] [295,2 keV ; 18,4 %] [242,0 keV ; 7,3 %] [786,0 keV ; 1,1 %] [53,2 keV ; 1,1 %]
		L-CE	[36,8-39,8 keV ; 10,4 %]	X-L	[9,4-16,4 keV ; 12,4 %]
		K-CE	[261,4 keV ; 9,3 %] [204,7 keV ; 7,2 %] [151,5 keV ; 5,3 %]	K-X	[77,1 keV ; 10,5 %] [74,8 keV ; 6,3 %] [86,8/87,3/87,9 keV ; 3,6 %] [89,7/90,1/90,4 keV ; 1,1 %]
<sup>214</sup> Bi (19,8 min)	Négligeable (< 0,1 %)	$\beta^-$	[3270 keV ; 19,7 %] [1540 keV ; 17,5 %] [1506 keV ; 17,1 %]	$\gamma$	[609,3 keV ; 45,5 %] [1764,5 keV ; 15,3 %] [1120,3 keV ; 14,9 %] [1238,1 keV ; 5,8 %]
<sup>214</sup> Po (162,3 $\mu$ s)	[7687 keV ; 99,99 %]	Aucune		Négligeable (< 0,1 %)	
<sup>210</sup> Pb (22,2 ans)	Négligeable	$\beta^-$	[17,0 keV ; 80,2 %] [63,5 keV ; 19,8 %]	$\gamma$	[46,5 keV ; 4,3 %]
		L-CE	[30,2-33,1 keV ; 58 %]	X-L	[9,4-15,7 keV ; 22 %]
<sup>210</sup> Bi (5,0 jours)	Négligeable (< 10 <sup>-4</sup> %)	$\beta^-$	[1162,1 keV ; 100 %]	Négligeable (< 10 <sup>-4</sup> %)	
<sup>210</sup> Po (138,4 jours)	[5304 keV ; 99,999 %]	Négligeable (< 10 <sup>-3</sup> %)		Négligeable (< 10 <sup>-3</sup> %)	

**Tableau 1.4** – Principales émissions  $\alpha$ , électrons ou photons du <sup>222</sup>Rn et de ses descendants (les descendants des branches minoritaires sont négligés). Chacune des émissions est donnée avec son énergie et sa probabilité d'émission. L'énergie des émissions  $\beta$  correspond à l'énergie maximale du spectre d'émission  $\beta$  du radionucléide considéré. Les émissions dont les probabilités sont faibles (inférieures à 0,1 %) ont été négligées. Dans le cadre d'émissions multiples (plusieurs  $\gamma$ ,  $\beta^-$ , X, etc), seules les émissions principales ou ayant un intérêt particulier ont été relevées. Les données nucléaires présentées ici sont tirées de la Table de Radionucléide (cf. Chisté *et al.* (2014)).

nant du radon interfère donc avec la plupart des instruments de mesure de la radioactivité.

L'interaction d'un flux primaire de particules cosmiques avec les atomes (O, N, Ar, Ne, Kr et Xe) des hautes couches de l'atmosphère génère, après plusieurs cascades d'interactions, un flux de particules : le flux secondaire de particules cosmiques. Ce flux est

Elément	Fraction (en %)	Débit de fluence (en $\text{cm}^{-2}.\text{s}^{-1}$ )
Muons	63,0	$1,90.10^{-2}$
Neutrons	21,3	$6,43.10^{-3}$
Électrons	15,3	$4,56.10^{-3}$
Protons	$5,77.10^{-1}$	$1,74.10^{-4}$
Pions	$4,44.10^{-2}$	$1,34.10^{-5}$

**Tableau 1.5** – Composition et flux moyen du rayonnement cosmique secondaire au niveau de la mer (Heusser (1995)).

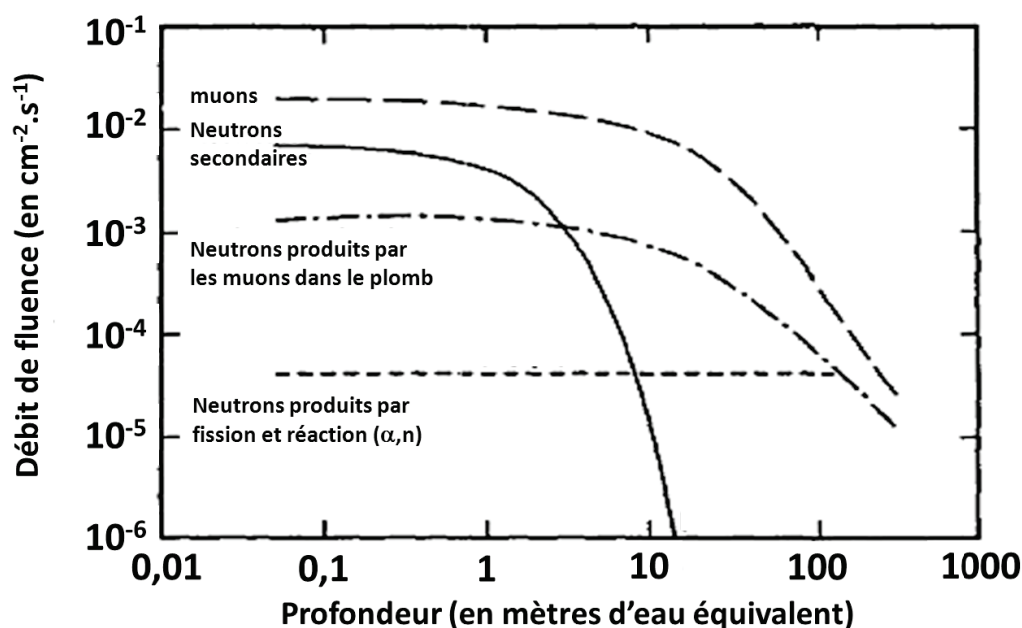
la dernière composante majoritaire de la radioactivité environnementale pouvant interférer avec une mesure de radioactivité. Principalement constitué de muons, neutrons, électrons, protons, et pions, la composition et l'intensité de ce flux varient en fonction des coordonnées géographiques du point d'observation, de la température, de la pression atmosphérique et de l'activité solaire. Sa composition moyenne au niveau de la mer est donnée dans le tableau 1.5.

Parmi les particules composant ce flux, les électrons, protons et pions sont une composante minoritaire (au niveau de la mer) et sont absorbés par les premiers centimètres de matière solide qu'ils traversent (toit du laboratoire, murs, etc.). Leur influence est donc négligée. En revanche, parce que les muons ont une masse plus importante (environ 207 fois celle de l'électron) et les neutrons sont insensibles à l'interaction électromagnétique, ces deux composantes du flux cosmique sont très pénétrantes. L'intensité du flux de ces particules diminue faiblement avec l'épaisseur de matière traversée, comme le montre la figure 1.5. L'influence de ces particules sur les mesures de radioactivité est double : (i) les neutrons et muons d'origine cosmique peuvent interagir directement avec le détecteur, (ii) mais ils peuvent aussi interagir avec l'environnement du détecteur (structure, blindage), ce sont alors les sous-produits de ces interactions qui interfèrent avec la mesure.

Le muon (communément noté  $\mu$ ) est un lepton, une particule élémentaire de spin 1/2, de masse égale à  $105,658 \text{ MeV}/c^2$ . Le muon est instable, et a une période de  $2,197.10^{-6} \text{ s}$ , selon Cottingham et Greenwood (2010). Les muons sont créés dans la haute atmosphère (à une altitude moyenne de 15 km) par la décroissance des mésons K et  $\pi$ , produits de l'interaction du rayonnement cosmique primaire avec les atomes N et O (Charalambus (1971)). Ils ont une durée de vie suffisante (effet relativiste) pour être détectés à la surface de la terre. Les muons d'origine cosmique sont très énergétiques, leur spectre s'étend de quelques dizaines de MeV à quelques centaines de GeV. Plusieurs études ont été effectuées pour déterminer le flux de muons sur Terre. Parmi celles-ci, on retiendra les suivantes Allkofer *et al.* (1971), Tsuji *et al.* (1998) et Motoki *et al.* (2003). La répartition angulaire du flux de muons (en fonction de l'angle au zénith  $\theta$  est notée (cf. Allkofer et Greider (1984)) :

$$j(p, \theta) = j(p, 0) \cos^{n(p)} \theta, \quad (1.24)$$

où  $p$  est le moment dynamique du flux de muon considéré, et  $n(p)$  varie entre 1,8 et 2,2 en fonction de  $p$ .



**Figure 1.5** – Débit de fluence en fonction de la profondeur des flux : secondaire de muons cosmiques, secondaire et tertiaire de neutrons cosmiques, et de neutrons provenant des fissions spontanées naturelles ou produit par réaction  $(\alpha,n)$  (figure tirée de Heusser (1995)).

Les principaux processus physiques qui régissent son interaction avec la matière sont (Povinec *et al.* (2008a), Povinec *et al.* (2008b) et Lohmann *et al.* (1985)) : l'ionisation directe (comprenant la production d'électron  $\delta$ ), la création de paires, le rayonnement de freinage (bremsstrahlung), la diffusion multiple et la capture de muons. Aux énergies considérées, le processus dominant l'interaction des muons cosmiques avec la matière est l'ionisation directe. Lors du passage d'un muon à proximité d'un atome, celui-ci arrache des électrons au cortège électronique de cet atome. Le spectre énergétique de ces électrons est très large. De plus, ces derniers peuvent être suffisamment énergétiques pour, à leur tour, ioniser les atomes environnants. On parle alors d'électrons  $\delta$ .

Dans l'article de Vojtyla (1995), l'auteur a étudié par simulation Monte-Carlo sous GEANT 3.15, l'interaction des muons cosmiques avec un détecteur au germanium et son blindage. Il montre que la traversée du cristal de germanium par un muon cosmique conduit à un dépôt énergétique par ionisation directe d'une dizaine de MeV dans le cristal, l'énergie déposée étant directement proportionnelle à la longueur de cristal traversé. La spectrométrie d'émission  $\gamma$  s'intéresse à la mesure de photons d'énergie entre 10 keV et 3 MeV. Ainsi, le dépôt d'énergie par ionisation directe des muons cosmiques n'est pas gênante pour ces mesures. L'interaction des muons avec le blindage du détecteur sera détaillée dans la section suivante.

Le neutron est un baryon, prédit par E. Rutherford en 1920 et découvert par J. Chadwick en 1932. Il est communément noté  $n$ . Avec le proton, ce sont les deux nucléons dont les combinaisons permettent de décrire l'ensemble des noyaux. Le neutron a une masse de

939,5654 MeV/c<sup>2</sup> et est de charge électrique nulle, ce qui le rend insensible à l'interaction électromagnétique. Le neutron n'interagit qu'avec les noyaux atomiques. Un neutron est capable de traverser plusieurs centimètres de matière sans interagir. Il est commun de diviser les neutrons en deux catégories : les neutrons rapides (d'énergie cinétique supérieure à 0,5 eV), et les neutrons lents (d'énergie cinétique inférieure à 0,5 eV). Cette limite à 0,5 eV est fixée arbitrairement (Knoll (2010)).

Les neutrons lents interagissent selon trois mécanismes, la diffusion élastique ou la capture radiative et la fission. Lors d'une diffusion élastique, un neutron rebondit sur un atome en changeant de direction et en cédant une faible fraction de son énergie à l'atome cible. Lors d'une capture radiative, le neutron est "absorbé" par un noyau donné. Afin de retrouver un équilibre, le noyau cible réémet ensuite une ou plusieurs particules. Les réactions nucléaires suivantes peuvent avoir lieu :

$$n + {}^A_ZX \rightarrow {}^{A+1}_ZX^*. \quad (1.25)$$

$$n + {}^A_ZX \rightarrow {}^{A-1}_ZX^* + n' + n''. \quad (1.26)$$

$$n + {}^A_ZX \rightarrow {}^{A-3}_{Z-2}X^* + \alpha. \quad (1.27)$$

$$n + {}^A_ZX \rightarrow {}^A_{Z-1}X^* + p. \quad (1.28)$$

$$n + {}^A_ZX \rightarrow {}^{A+1}_ZX^* \rightarrow FF_1^* + FF_2^* + \dots \quad (1.29)$$

où  $X$  est le noyau cible, et où  $FF_1$  et  $FF_2$  sont les deux fragments de fission. La notation  $*$  indique que le noyau considéré est dans un état excité. Cette énergie supplémentaire est généralement restituée par l'émission spontanée de photon  $\gamma$ , mais d'autres mécanismes tels qu'une conversion interne peuvent également avoir lieu.

Dans le cas de neutrons rapides, les deux phénomènes dominants sont la diffusion élastique et la diffusion inélastique. Lors d'une diffusion élastique, le neutron rapide possède une énergie suffisante pour pouvoir en transmettre une fraction non négligeable au noyau cible. On parle alors de noyau de *recul*. La diffusion inélastique est un phénomène prédominant pour les neutrons d'énergie élevée. Lors d'une diffusion inélastique, un neutron transmet suffisamment d'énergie à un noyau cible pour que celui-ci soit dans un état "excité". Le noyau peut aussi avoir récupéré une partie de cette énergie de façon cinétique, alors, comme pour une diffusion élastique, on est en présence d'un noyau de recul. Les équations décrivant ces deux phénomènes sont :

$$n + {}^A_ZX \rightarrow {}^A_ZX + n. \quad (1.30)$$

$$n + {}^A_ZX \rightarrow {}^A_ZX^* + n. \quad (1.31)$$

Dans les deux cas (lents ou rapides), l'interaction des neutrons avec un détecteur est caractéristique de celui-ci. Consécutivement au passage (et parfois à l'absorption) d'un neutron, les noyaux constituant un détecteur peuvent réémettre de l'énergie instantanément (dans le cas de la diffusion élastique), ou de façon différée (dans le cas de la capture radiative ou de la diffusion inélastique). Un noyau de recul va, en rejoignant sa position



initiale dans le réseau cristallin, libérer sous forme d'électron entre 0 et 40 keV d'énergie dans la matière. Un noyau activé (suite à une capture radiative), ou excité (suite à une diffusion inélastique), va émettre des particules selon son schéma de décroissance propre.

Energie (keV)	Noyau émetteur	Période
23,4	$^{71m}\text{Ge}$	20,4 ms
53,4	$^{73m}\text{Ge}$	499 ms
66,7	$^{73m}\text{Ge}$	499 ms
68,7	$^{73*}\text{Ge}$	négligeable
139,7	$^{75m}\text{Ge}$	47,7 s
159,7	$^{77m}\text{Ge}$	52,9 s
175	$^{71m}\text{Ge}$	20,4 ms
176,2	$^{70*}\text{Ge}$	négligeable
198,3	$^{71m}\text{Ge}$	20,4 ms
545,5	$^{76*}\text{Ge}$	négligeable
562,9	$^{76*}\text{Ge}$	négligeable
569,7	$^{76*}\text{Ge}$	négligeable
595,8	$^{74*}\text{Ge}$	négligeable
591,1	$^{76*}\text{Ge}$	négligeable
608,4	$^{74*}\text{Ge}$	négligeable
630	$^{72*}\text{Ge}$	négligeable
693	$^{72*}\text{Ge}$	négligeable
834,1	$^{72*}\text{Ge}$	négligeable
867,9	$^{74*}\text{Ge}$	négligeable
1039,5	$^{70*}\text{Ge}$	négligeable
1063,6	$^{74*}\text{Ge}$	négligeable

**Tableau 1.6** – Pics principaux d'activation ou d'excitation des isotopes du germanium (Siiskonen et Toivonen (2005) et Bossew (2005)). Les valeurs des périodes sont tirées de Gilmore (2008). Les indices à coté du nombre de nucléon de chacun des radionucléide correspondent à : m, un état métastable ; et \* un état excité.

Dans le cas d'un spectromètre HPGe, la composition isotopique naturelle d'un cristal de germanium est (cf. Gilmore (2008)) :  $^{74}\text{Ge}$  à 36,5 %, de  $^{72}\text{Ge}$  à 27,4 %, de  $^{70}\text{Ge}$  à 20,5 % et de  $^{76,73}\text{Ge}$  à 7,8 % (chacun). Les différentes émissions  $\gamma$  des isotopes métastables ou excités du germanium sont données dans le tableau 1.6. Pour ces isotopes, la période d'un état excité est très courte (inférieure à la nanoseconde), en revanche celle d'un état métastable peut être plus longue (jusqu'à quelques dizaines de secondes pour les états  $^{75m}\text{Ge}$  et  $^{77m}\text{Ge}$ , cf. tableau 1.6). Ainsi, parce que l'émission d'un photon par un isotope excité est quasi-instantanée, ce photon peut être détecté en même temps qu'un photon émis lorsque le noyau revient à sa position initiale. Ceci expliquant pourquoi les pics d'un isotope activé du germanium ont une forme triangulaire particulière, comme étudié par Siiskonen et Toivonen (2005).

Bien qu'ayant des périodes courtes devant une durée d'acquisition, ces activations neutroniques sont créées en continu dans le cristal de germanium. Ceci leur procurent une pseudo-période radioactive infinie. Ainsi sans précautions particulières l'ensemble des pics

listés dans le tableau 1.6 peut être observé dans le bruit de fond d'un détecteur au germanium, leur intensité est proportionnelle au flux cosmique au niveau du laboratoire.

### 1.4.3 Blindage

Afin de diminuer l'interaction entre les différentes sources de radioactivité environnementale (citées dans la section 1.4.2) et un détecteur, différentes techniques de réduction du bruit de fond sont utilisées. On parle de blindage passif lorsqu'un matériau est utilisé pour diminuer le flux de particules interférentes atteignant un détecteur, et de blindage actif lorsqu'une technique de mesure particulière est mise en œuvre pour empêcher la mesure par le détecteur de possibles particules interférentes. Ces deux types de blindages sont présentés dans cette partie.

#### Le blindage passif

Comme le montre le tableau 1.3 la part dominante du bruit de fond d'un détecteur est imputable aux particules émises par les radionucléides primordiaux ou anthropogéniques. Ainsi le blindage a pour objectif premier de diminuer ce flux de particules atteignant le détecteur.

Afin de favoriser l'absorption des photons  $\gamma$  émis par les radionucléides primordiaux ou anthropogéniques, il est commun d'entourer les détecteurs d'une couche de matériau de numéro atomique ( $Z$ ) élevé. Les principaux matériaux utilisés sont donnés dans le tableau 1.7. Exceptés quelques cas particuliers comme pour Horne *et al.* (2013), le plomb est généralement utilisé comme matériau principal de blindage passif. Il possède l'avantage d'être peu cher, d'être très pur, et d'absorber très efficacement les photons (10 cm de plomb absorbent 99,97 % d'un flux de photons de 1 MeV). En revanche, l'utilisation de plomb dans le blindage d'un spectromètre comporte deux inconvénients majeurs : les photons de fluorescence X du plomb génèrent un bruit de fond à basse énergie (les photons K-X ont une énergie comprise entre 74,8 et 90,4 keV), et le plomb a une teneur naturelle en  $^{210}\text{Pb}$  non négligeable (en moyenne 2500 Bq( $^{210}\text{Pb}$ )/kg cf. Heusser (1995)).

Les particules émises lors de la désintégration du  $^{210}\text{Pb}$  et de ses descendants sont données dans le tableau 1.4. Il émet des photons  $\gamma$  de 46,5 keV qui sont fortement auto-atténués dans le plomb (la traversée de 0,6 mm de plomb atténue 99,9 % d'un flux de photons de 46,5 keV). Ainsi, ce sont uniquement les atomes de  $^{210}\text{Pb}$  présents en surface d'un volume de plomb qui émettent des photons capables de sortir de ce volume. La radioactivité du  $^{210}\text{Pb}$  n'est donc que faiblement gênante. En revanche, celle de son radionucléide fils, le  $^{210}\text{Bi}$ , est plus problématique. Le  $^{210}\text{Bi}$  émet des électrons de forte énergie (jusqu'à 1162,1 keV) par décroissance  $\beta^-$ . Ces électrons émettent à leur tour un spectre continu de photons (d'énergie suffisante pour ne pas être auto-atténué) par rayonnement de freinage dans le plomb. Ce sont ces photons qui vont interagir avec le spectromètre au

germanium, comme étudié par Vojtyla (1996b).

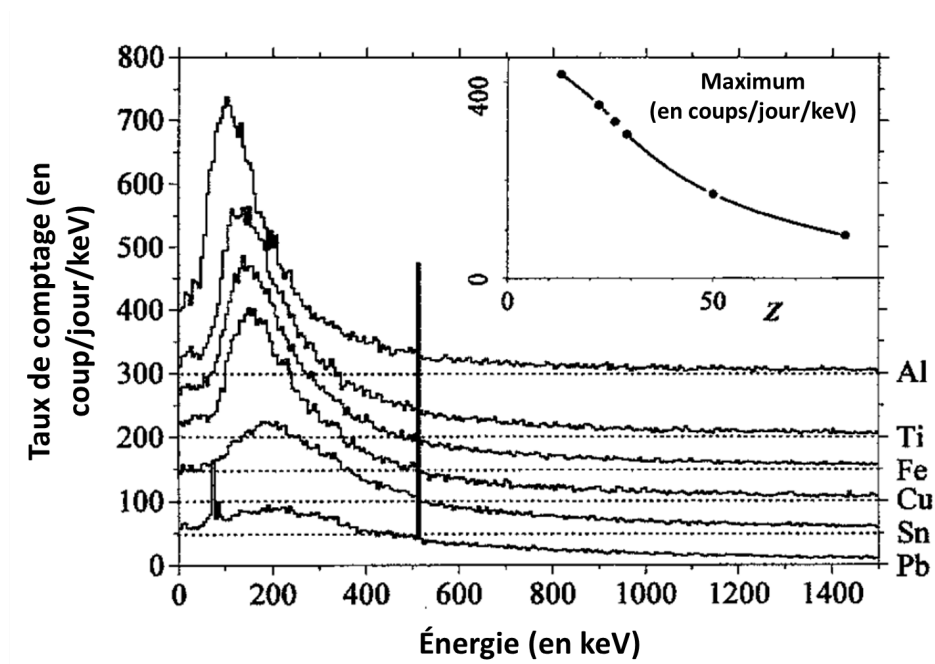
Matériaux	Z	Masse atomique	Contaminant	Radioactivité typique	Particularité
Al	13	26,98			Peut être préparé bas-bruit
Fe	26	55,85	$^{60}\text{Co}$ et $^{137}\text{Cs}$	Jusqu'à moins d'un mBq/kg pour du fer ancien	Peu cher, mais contamination gênante
Cu	29	63,55		Peut être diminuée par un traitement électrolytique	Cher et assez sensible à la production cosmognéique de radionucléides
Sn	50	118,71			Peu commun, (Sokolov, Starostin et al. 2012)
Hg	80	200,59			À l'état liquide dans les conditions normales de température et de pression
Pb	82	207,19	$^{210}\text{Pb}$	Jusqu'à $< 0,3$ Bq/kg	Matériau le plus couramment utilisé

**Tableau 1.7** – Principaux matériaux utilisés pour l'absorption des photons lors de la mise en place d'un blindage passif. Les matériaux de faible masse atomique sont surtout utilisés pour l'absorption des photons X (dans le cas d'un blindage multi-couches). Les masses atomiques sont données en unité de masse des atomes unifiée.

Afin de s'affranchir des photons K-X du plomb, un blindage multicouche à numéro atomique décroissant peut être utilisé. Cela consiste à placer en aval du plomb une ou plusieurs fines couches de matériau dont les numéros atomiques sont de plus en plus bas. Ceux-ci vont permettre d'absorber les photons K-X de la couche précédente, en ayant eux-mêmes des photons K-X d'énergie plus faible.

Afin de s'affranchir de la présence de  $^{210}\text{Pb}$  dans le plomb, il est nécessaire d'utiliser du plomb ancien. En effet, le plomb est utilisé depuis longtemps par l'Homme et sa période radioactive est de 22,23 ans. Ainsi le plomb utilisé par le passé (tel que dans les toitures anciennes, pour le lestage des navires ou dans les canalisations) a perdu par décroissance sa radioactivité intrinsèque. Dans l'industrie, le plomb peut être certifié en fonction de sa teneur en Bq( $^{210}\text{Pb}$ )/kg de plomb. Une étude de bruit de fond induit par la radioactivité intrinsèque du plomb ( $^{210}\text{Pb}$  et  $^{210}\text{Bi}$ ) est résumée dans Vojtyla (1996b). L'auteur en conclut que l'utilisation d'une épaisseur de plomb de très haute pureté de 18 mm entre du plomb étalon et un détecteur réduit d'un facteur 100 l'influence de cette radioactivité dans le bruit de fond de ce détecteur. L'utilisation de 30 mm de plomb de très haute pureté la réduit à un facteur négligeable ( $10^{-3}$  j $^{-1}$ /keV sur la plage 0-1161 keV).

En revanche, l'utilisation de matériaux lourds pour protéger un détecteur du rayonnement issu des radionucléides naturels ou anthropogéniques dispersés à proximité de celui-ci souffre d'un problème majeur : l'interaction des muons avec ces matériaux lourds entraîne des cascades d'interactions qui génèrent un nouveau flux de particules (dit flux tertiaire). Ce flux est en particulier composé de photons et de neutrons. Par la suite, les générations de photons et de neutrons résultant du passage de muons dans le blindage d'un spectromètre seront respectivement étudiées.

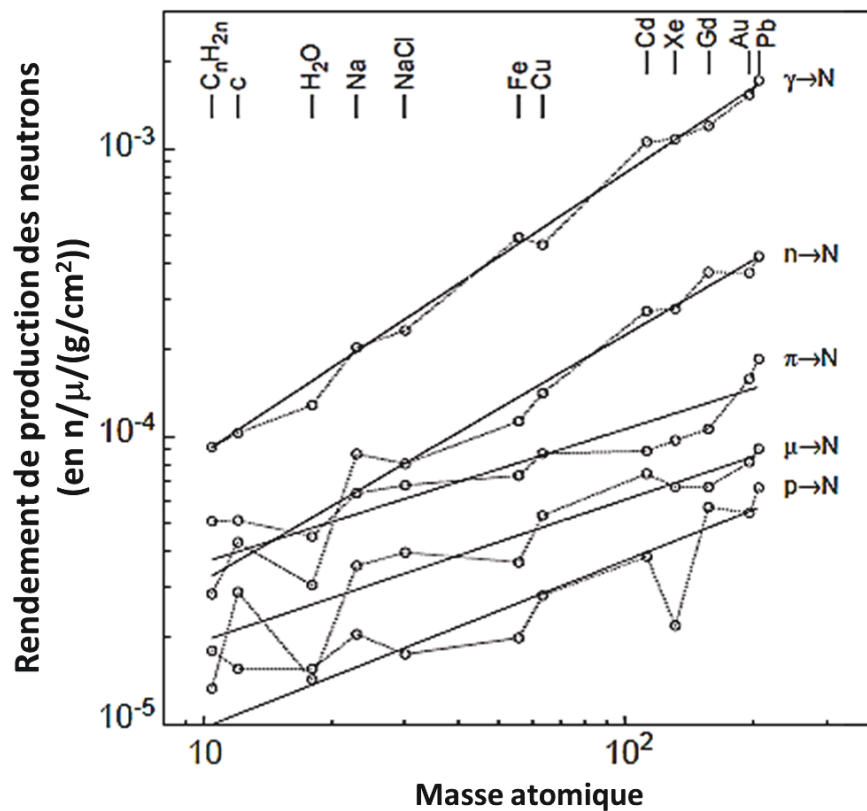


**Figure 1.6** – Simulations Monte-Carlo du bruit de fond induit par les muons cosmiques dans un détecteur au germanium en fonction de la composition de son blindage. Les épaisseurs de chacun des blindages sont normalisées à une épaisseur de 15 cm de plomb. Ces épaisseurs sont donc de 63,1 cm, 37,8 cm, 21,6 cm, 19 cm, 23,3 cm et 15 cm pour des blindages constitués respectivement de Al, Ti, Fe, Cu, Sn et Pb. L'encart en haut à droite de la figure donne la valeur maximale de chacun des continus en fonction du numéro atomique des matériaux composant les blindages. Cette figure est extraite de Vojtyla (1996b).

Par simulation Monte-Carlo, Vojtyla a mené plusieurs études (Vojtyla (1995) ; Vojtyla (1996a) et Vojtyla et Povinec (2000)) sur l'interaction des muons cosmiques avec le blindage et le détecteur au germanium, sans prendre en compte les neutrons. Il a en premier lieu montré que le bruit de fond à basse énergie est composé à 81 % par les photons issus du rayonnement de freinage des électrons  $\delta$  produits lors du passage de muons cosmiques dans le blindage. Il s'est aussi intéressé aux variations de ce bruit de fond cosmique dans un spectromètre au germanium en fonction des différentes configurations de blindage envisagées, comme illustré dans la figure 1.6. Enfin, l'auteur a étudié les bruits de fond obtenus par simulations de détecteurs au germanium placés dans des blindages de géométries variables : blindage circulaire ou rectangulaire ; blindage avec une unique couche de

plomb ou avec plusieurs couches (dit multicouches) en alternant des couches de plomb, de cuivre, d'étain et de cadmium ; et spectromètre placé en surface ou à 20 mètres équivalents eau (ou m.w.e.). On retiendra des simulations de P. Vojtyla que :

- Les blindages multicouches, n'ont d'intérêt que si les raies X du plomb sont gênantes. En effet, même s'ils permettent de supprimer ces raies, ces blindages ont pour conséquence d'augmenter le comptage intégral dans la zone de 0 à 500 keV.
- Un blindage de seulement 15 cm de plomb permet le comptage intégral le plus faible.
- Entre un spectromètre de surface et un spectromètre situé à 20 m.w.e. de profondeur, le bruit de fond intégral simulé est de 3 à 3,2 fois plus faible.
- Il n'y a pas de différence significative entre un blindage circulaire et un blindage rectangulaire.



**Figure 1.7** – Simulation sous GEANT4 des rendements de production de neutrons tertiaire (en neutrons/muon/(g/cm<sup>2</sup>)) suite à la traversée d'un flux de muons de 280 GeV pour différents matériaux. Les rendements de chacun des mécanismes (réaction photonucléaire, spallation neutronique, spallation pionique, spallation muonique et spallation protonique) sont détaillés. Sur cette figure, chacune des particules à l'origine des réactions présentées ( $\gamma$ ,  $n$ ,  $\pi$  et  $p$ ) ont été produites suite au passage d'un muon. Cette figure est extraite de Araujo *et al.* (2005).

La génération de neutrons (dits tertiaires) suite au passage des muons dans le blindage d'un détecteur a été étudiée aussi bien expérimentalement (Chazal *et al.* (2002)) que par

simulation (Wang *et al.* (2001), Kudryavtsev *et al.* (2003), Araujo *et al.* (2005), Kudryavtsev *et al.* (2008) et Lindote *et al.* (2009)). Ces différentes études démontrent que différents mécanismes nucléaires sont responsables de cette génération de neutrons. Ainsi, lors de leur passage à travers la matière les muons induisent la création de neutrons :

- soit par collision nucléaire directe (interaction directe muon/noyau) ;
- soit par collision nucléaire secondaire (interaction indirecte nucléon ou pion/noyau, lorsque ces nucléons ou pions sont créés initialement par un muon) ;
- ou encore par réaction photonucléaire (interaction indirecte photon/noyau). Où dans ce cas, les photons sont générés par rayonnement de freinage des électrons  $\delta$ , eux-mêmes produits par ionisation lors du passage des muons.

Comme l'illustrent les figures 1.7 et 1.8, le rendement de production de neutrons de ces mécanismes nucléaires et leur part dans le rendement global de production de neutrons varient avec le matériau traversé et l'énergie du muon incident. Néanmoins, on retiendra que quel que soit le matériau traversé et l'énergie du muon incident, la réaction photonucléaire est le mécanisme principal générant des neutrons dans la matière.

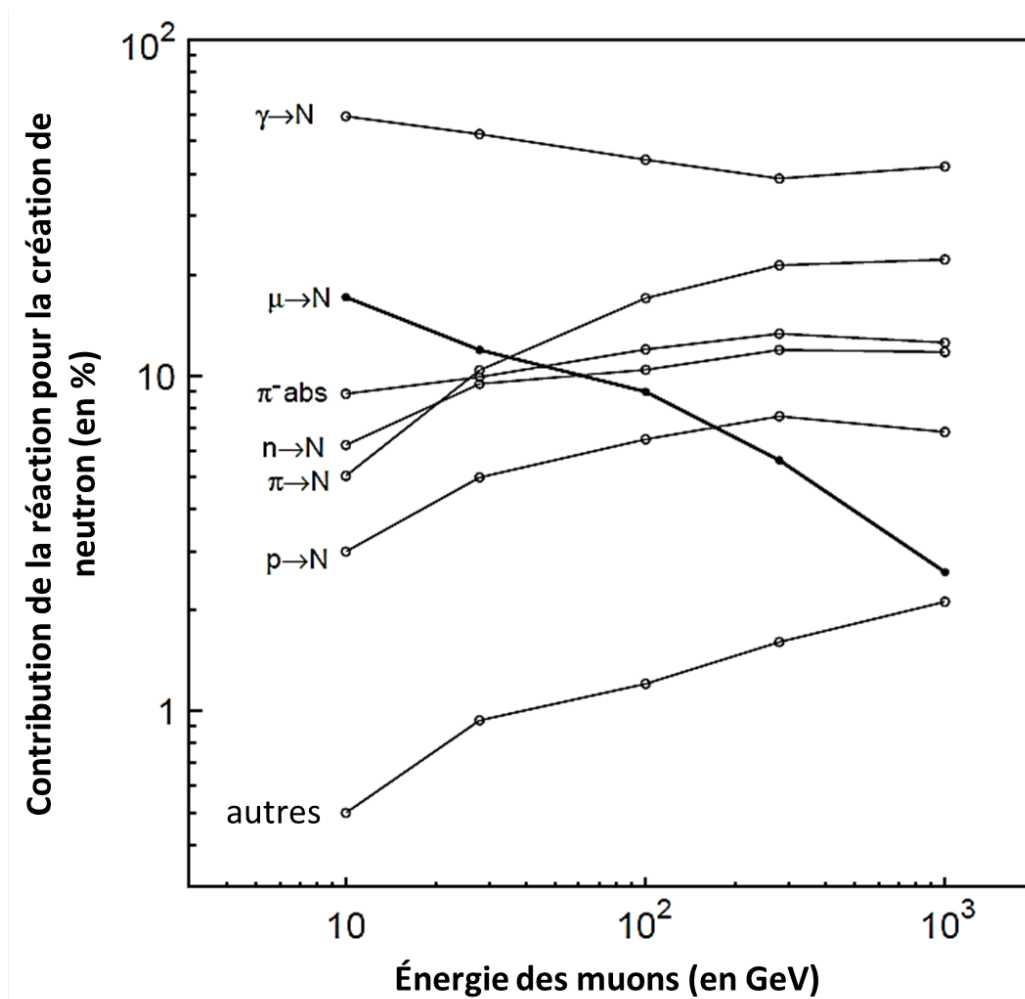
Enfin, ces études montrent aussi que plus le matériau traversé par le flux de muons est dense, plus le taux de production de neutrons est élevé. En particulier, l'importance de la génération de neutrons consécutive à la traversée de muons à travers le plomb est illustrée en figure 1.7. L'utilisation d'une couche de polyéthylène boré (PE/B) pour le ralentissement et l'absorption des neutrons est couramment mise en œuvre (cf. Schwaiger *et al.* (2002)). L'absorption des neutrons par le bore est traduite par la réaction nucléaire :



Mais cette réaction entraîne la génération de photons  $\gamma$  de 477 keV par le  $^7\text{Li}^*$ .

Au final il faut retenir que pour la conception d'un blindage passif d'un spectromètre bas-bruit de fond, les compromis suivants sont à prendre en compte :

- le plomb permet l'absorption des rayonnements de photons issus de la radioactivité environnementale mais peut lui aussi perturber la mesure du fait : (i) de sa radioactivité intrinsèque et (ii) de son émission de neutrons et de photons consécutivement au passage de muons cosmiques secondaires.
- le polyéthylène boré (PE/B) permet l'absorption efficace des neutrons, mais celle-ci entraîne l'émission de photons  $\gamma$  à 477 keV. Le PE/B peut également être contaminé par des traces de radionucléides naturels.
- le cuivre peut être traité pour réduire très fortement sa radioactivité intrinsèque. Il peut être utilisé comme épaisseur de blindage interne pour absorber les photons de fluorescence X du plomb. Mais il est très sensible à l'activation neutronique.



**Figure 1.8** – Simulation sous GEANT4 de la contribution relatives de différents mécanismes de production de neutrons suite à la traversée par un flux de muons de 10 à 1000 GeV d'un plastique scintillant organique (ici  $C_{10}N_{20}$ ). Plusieurs mécanismes sont considérés, parmi lesquels : la réaction photonucléaire, la spallation neutronique, la spallation pionique, la spallation muonique, la spallation protonique et l'absorption de pion. La catégorie "autres" mécanismes, regroupe des mécanismes de moindre importance (tels que des réactions de spallation impliquant des fragments de fissions ou certains hadrons). Cette figure est extraite de Araujo *et al.* (2005).

### Le blindage actif

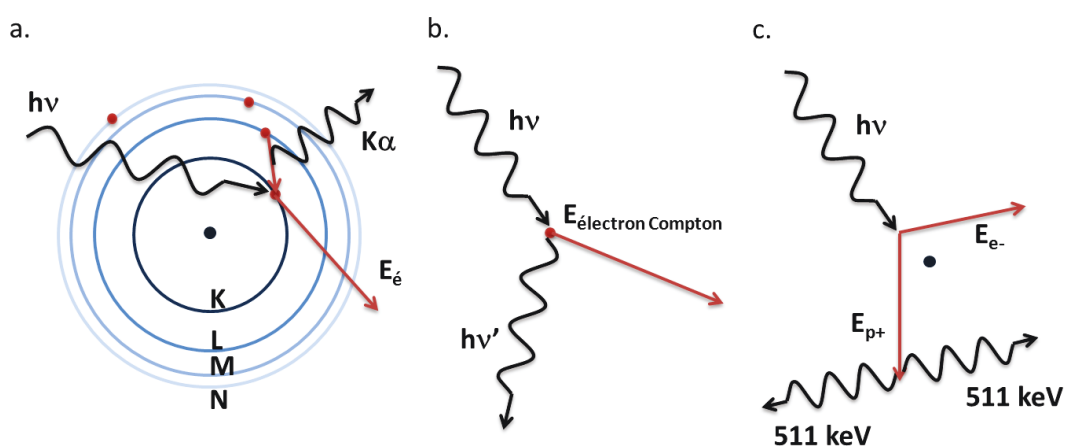
Afin de s'affranchir du signal généré lors de l'interaction d'un muon avec le cristal d'un détecteur HPGe ou son blindage, un système de veto cosmique peut être installé. Ceci consiste à installer autour du blindage un ensemble de plaques scintillantes. Lors du dépôt d'une énergie caractéristique d'un muon dans l'une de ces plaques, l'acquisition du signal dans le détecteur HPGe est inhibée pendant un court laps de temps (entre 1 et quelques centaines de  $\mu s$  selon les systèmes). Les plaques scintillantes fonctionnent en anti-coïncidence avec le détecteur HPGe. Ce type de système est largement répandu dans la communauté scientifique, comme décrit par : Heusser (1993), Pointurier *et al.* (1996), Schroettner *et al.* (2004), Povinec *et al.* (2004), Ferreux *et al.* (2009), Thomas *et al.* (2013),

Burnett et Davies (2014) et Khan *et al.* (2014).

L'étude par simulation Monte-Carlo de l'efficacité d'un veto cosmique est synthétisée dans Vojtyla *et al.* (1994). Le veto cosmique considéré dans cette étude est constitué d'une unique plaque (un compteur proportionnel) placée au-dessus du blindage d'un détecteur HPGe. Ce veto permet la réduction d'un facteur 2,2 du bruit de fond intégral, alors que par simulation Monte-Carlo, les auteurs l'estiment à un facteur 4,2. Selon eux, cette différence est due à : (i) la teneur en  $^{210}\text{Pb}$  du plomb qui n'est pas simulée, (ii) un rendement de détection des muons non optimal par le compteur proportionnel, et (iii) l'absence de prise en compte des neutrons.

Enfin, une autre technique de blindage a été mise au point et est couramment mise en œuvre (Heusser (1995)), à savoir l'injection de gaz exempt de radioactivité résiduelle dans la chambre de mesure. Cette injection impose une surpression qui chasse le radon de la chambre de mesure. Le gaz le plus couramment utilisé est de l'azote. En chassant le radon, le bruit de fond généré par ses descendants est fortement diminué.

### Le fond Compton : un bruit de fond supplémentaire des détecteurs HPGe

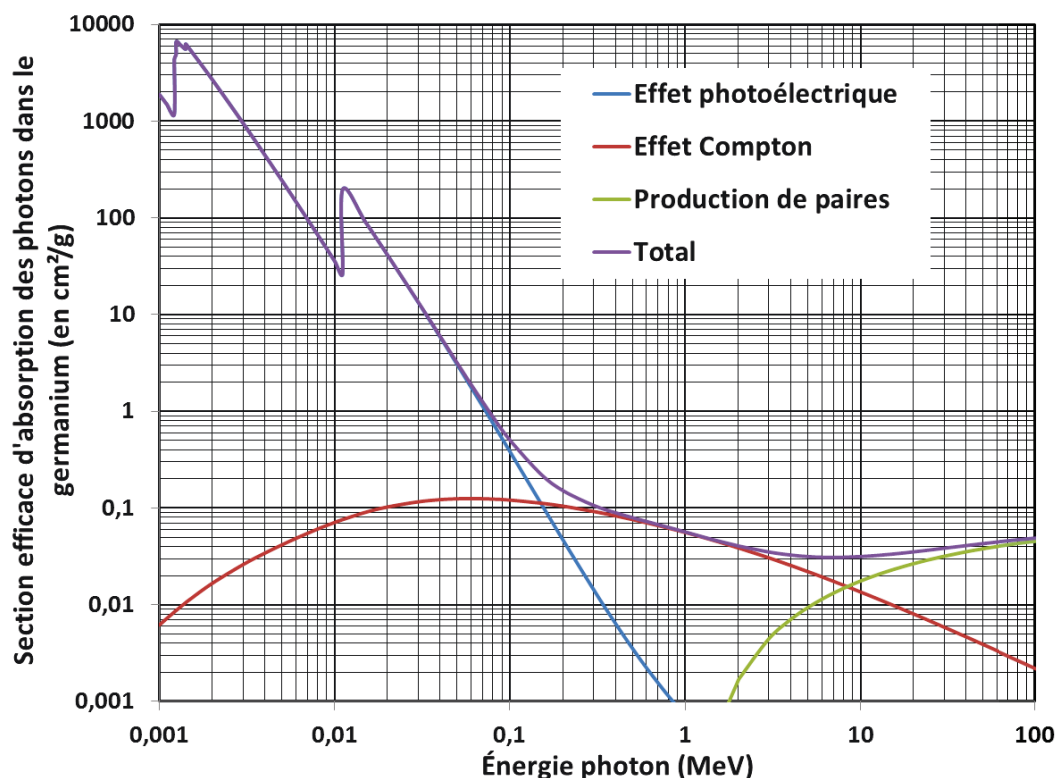


**Figure 1.9** – Schéma des mécanismes d'interaction des photons (de 1 keV à 100 MeV) avec la matière. a. : effet photoélectrique, b. : effet Compton, c. : création de paires.

Sur la gamme de 1 keV à 100 MeV, un photon interagit avec la matière selon trois mécanismes : (i) l'effet photoélectrique, (ii) l'effet Compton et (iii) la création de paires. Ces mécanismes sont schématisés en figure 1.9.

Pour ces trois mécanismes, les coefficients d'atténuation linéaires des photons du germanium sont donnés en 1.10. Sur cette figure, on remarque qu'au-dessus de 150 keV, l'absorption par effet Compton est plus probable que par effet photoélectrique. À 1 MeV, l'absorption directe par effet photoélectrique est négligeable. Or, lors d'un effet Compton, l'énergie du photon incident est partagée entre un photon Compton diffusé et un électron.



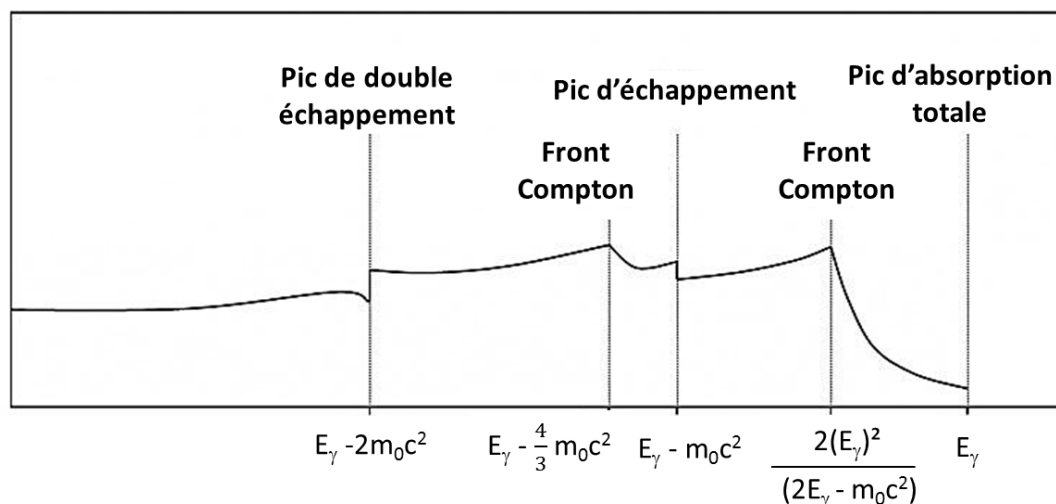


**Figure 1.10** – Coefficient d'atténuation linéaire du germanium (normalisé par la densité du matériau) en fonction de l'énergie du photon incident, d'après Hubbell et Seltzer (2004).

Si ce photon Compton n'est pas réabsorbé dans le germanium, alors seule une partie de l'énergie du photon incident aura été déposée. Cette répartition partielle de l'énergie du photon incident crée un continuum d'événements dans un spectre d'acquisition avec un détecteur HPGe, comme l'illustre la figure 1.11. Ce *continuum* d'événements est appelé le *fond Compton*.

L'effet du fond Compton est plus marqué avec les détecteurs HPGe qu'avec d'autres détecteurs (tels que les détecteurs NaI(Tl) ou CsI(Tl)) car le numéro atomique du germanium est plus faible que celles des autres matériaux pouvant être utilisés pour détecter les photons.

Ce fond Compton est très gênant en spectrométrie d'émission  $\gamma$  environnementale pour la mesure des traces. En effet, il suffit que l'échantillon à mesurer contienne une activité non négligeable d'un radionucléide émettant des photons  $\gamma$  à haute énergie pour que le fond Compton de ce dernier cache la présence d'autres radionucléides potentiellement présents à très bas niveau. Ceci peut être souvent le cas lors de mesure d'échantillons environnementaux. Comme lors de la mesure d'échantillon d'un filtre frais de prélèvement des particules atmosphériques radioactives (contenant une forte activité de descendants du radon) ou lors de la mesure d'échantillon de sols ou de sédiments (contenant une quantité significative de  $^{40}\text{K}$ ). Afin de s'affranchir de cela, un blindage actif spécifique peut être installé : le veto Compton. Ce type de système est couramment utilisé. On retiendra



**Figure 1.11** – Schéma illustrant le "fond Compton" : spectre résultant du dépôt d'énergie d'une source mono-énergétique de photon à  $E_\gamma$  (ici  $E_\gamma > 1022 \text{ keV}$ ). Ainsi, un pic de *haute énergie* augmente la ligne de base du spectromètre à plus basse énergie. Ce schéma est tiré de Aberlizov (2008).

les systèmes récemment mis en œuvre suivant de Warren et Runkle (2012) ou McNamara *et al.* (2012).

Le système de veto Compton consiste à placer un détecteur supplémentaire (généralement un détecteur à scintillation inorganique) autour du cristal d'un détecteur HPGe, fonctionnant en anti-coïncidence avec celui-ci. Tout photon s'échappant du cristal de germanium et détecté par le veto Compton va inhiber pendant un court laps de temps l'acquisition dans le détecteur HPGe. Afin d'être le plus efficace possible, un tel système doit être placé au plus proche des cristaux de germanium des détecteurs HPGe. Or, les tubes photo-multiplicateurs équipant les détecteurs à scintillation ont un bruit de fond radioactif non-négligeable (cf. Heusser (1995)). Le système de veto-Compton augmente donc significativement le bruit de fond du détecteurs HPGe qu'il entoure.

Au final, l'utilisation d'un système de veto-Compton permet donc de réduire efficacement le fond Compton d'une mesure d'un échantillon actif mais augmente le bruit de fond d'une mesure d'un échantillon faiblement actif. De plus, il entraîne une forte chute du rendement pour la mesure des éléments émettant des photons en cascades. L'utilisation d'un veto-Compton n'est donc pas généralement justifiée et s'applique au cas par cas.

## 1.5 Mesures de radioactivité dans l'environnement

La mesure de la radioactivité dans l'environnement s'intéresse à la quantification de radionucléides dans une matrice donnée : biologique, géologique, etc. Les radionucléides qui peuvent être mesurés sont variés. Une mesure de radioactivité environnementale a des applications multiples car elle peut apporter de nombreuses informations : contami-

nation anthropogénique d'un cours d'eau, datation d'un fossile, origine d'une météorite, composition d'une roche, origine géographique d'un oxyde, activité résiduelle d'un déchet nucléaire, etc. Ces mesures de radioactivité dans l'environnement sont donc applicables dans les domaines de l'exploration géologique, la traçabilité des minerais, la surveillance des rejets de l'industrie nucléaire, la gestion des déchets nucléaires, l'astronomie, la climatologie, la surveillance des anciens sites d'essais nucléaires et la surveillance des traités de non-prolifération nucléaire (TNP) et d'interdiction complète des essais nucléaires (TICE).

Chacune de ces applications nécessite la mesure de radionucléides d'intérêt. Dans le cadre de la surveillance du TICE, la mesure de la radioactivité dans l'environnement doit servir à la détection et à la caractérisation d'un éventuel essai nucléaire. Pour cela, une liste des radionucléides d'intérêt a été définie par l'organisation du TICE (voir De Geer (1999)). Cette liste comporte (i) 51 produits de fission, (ii) 41 produits d'activation et (iii) 4 résidus de la matière fissile ( $^{224}\text{Ra}$ ,  $^{237}\text{U}$ ,  $^{239}\text{Np}$  et  $^{241}\text{Am}$ ). Cette liste a été choisie en imposant différents critères permettant d'optimiser la détection d'un éventuel essai nucléaire. En plus des conditions sur les rendements de productions de ces radionucléides, on retiendra entre autre que :

- la période des radionucléides considérés doit être comprise entre 6h et 1000 ans,
- chaque radionucléide doit émettre un photon  $\gamma$  dans la gamme 50-2700 keV avec une probabilité d'au moins 0,1 %,
- la section efficace de production des produits d'activation issus des matériaux non fissile du système détonnant (emballage, électronique, détecteurs, etc.) doit être supérieure à 0,1 barn.
- les seuls gaz radioactifs considérés sont ceux du xénon.

Parmi ces 51 produits de fission, 4 gaz rares radioactifs sont particulièrement importants. Ce sont 4 radio-isotopes du xénon qui potentiellement permettent, grâce à leur propriété de diffusion à travers la roche, de détecter et caractériser un éventuel essai nucléaire confiné. Le xénon étant un gaz rare, la détection de radioxénon (abréviation pour les radio-isotopes du xénon) dans l'environnement nécessite des technologies de mesure dédiées.

Ces quatre radioxénons sont les  $^{131\text{m}}\text{Xe}$ ,  $^{133\text{m}}\text{Xe}$ ,  $^{133}\text{Xe}$  et  $^{135}\text{Xe}$ . Leurs émissions principales sont données dans le tableau 1.8. Parce qu'ils diffusent dans la matière et que leurs périodes radioactives sont comprises entre 0,38 et 11,96 jours, ces radioxénons sont particulièrement adaptés à la détection à longue distance d'un essai nucléaire dissimulé (par exemple souterrain) une à dix semaines après son déclenchement. Le bruit de fond environnemental en radioxénon atmosphérique n'est pas négligeable (voir l'étude Achim *et al.* (2014)). En effet les usines de production de radio-isotopes médicaux émettent continuellement du radioxénon dans l'atmosphère. Par exemple, l'étude de Saey *et al.* (2010) donne une synthèse des niveaux de radioxénon atmosphérique en Europe. Afin de pouvoir distinguer un rejet de radioxénon d'origine civile d'un rejet d'origine militaire, une méthode basée sur les rapports isotopiques entre ces 4 radioxénons (en accordant une forte

Isotope	$^{131m}\text{Xe}$	$^{133m}\text{Xe}$	$^{133}\text{Xe}$	$^{135}\text{Xe}$
période (jours)	11,96	2,20	5,25	0,38
Raie $\gamma$ principale (en keV)	163,9 (1,9 %)	233,2 (10,2 %)	81,0 (37,0 %)	249,8 (90,0 %)
Raie $K\alpha$ -X (en keV)	29,7 (44,2 %) (Xe)	29,7 (45,7 %) (Xe)	30,9 (38,5 %) (Cs)	30,9 (4,1 %) (Cs)
Raie $K\beta'_1$ -X (en keV)	33,7 (8,3 %) (Xe)	33,7 (8,6 %) (Xe)	35,1 (7,3 %) (Cs)	35,1 (1,0 %) (Cs)
Energie $\beta$ maximum (en keV)	–	–	346,4 (99,1 %)	905,0 (96,0 %)
Electron de conversion de la couche K (en keV)	129,4 (61,4 %)	198,7 (63,5 %)	45,0 (52,9 %)	214,0 (5,7 %)
Electron de conversion des couches L, M ou N (en keV)	159,7 (36,5 %)	229,0 (26,3 %)	76,5 (9,9 %)	244,9 (0,9 %)
Electron K Auger (en keV)	23,5-33,4 (6,9 %)	23,5-33,4 (7,1 %)	24,4-34,76 (5,65 %)	24,4-34,76 (négligeable)

**Tableau 1.8** – Emissions principales des 4 radionucléides d'intérêt pour le TICE. Les probabilités d'émission des rayonnements considérés sont données entre parenthèses. Ces données sont tirées de la Table des Radionucléides (cf. Chisté *et al.* (2014)) et de Axelsson *et al.* (2012). La raie d'émission  $K\alpha$ -X correspond aux émissions  $K\alpha_1$  et  $K\alpha_2$ . La raie d'émission  $K\beta'_1$ -X correspond aux émissions  $K\beta_1$ ,  $K\beta_3$  et  $K\beta_5$ .

importance aux deux radionucléides métastables) a été développée par Kalinowski *et al.* (2010).

Lors d'une mesure de radioactivité, différents paramètres permettent de relier un comptage et une activité. Pour un radionucléide  $X$  émettant une radiation  $r$ , l'activité  $A(X, r)$  est reliée au comptage  $N_{net}(r)$  dans la *ROI* caractéristique de  $r$  par l'équation :

$$A(X, r) = c_d c_m c_s \frac{N_{net}(r)}{T_{acq} \epsilon_r P_r} ; \quad (1.33)$$

où  $c_d$ ,  $c_m$  et  $c_s$  sont respectivement les facteurs de correction pour la décroissance de  $X$  entre la date de référence et la date de début de mesure, pour la décroissance de  $X$  durant la mesure, et pour les sommations durant la mesure,  $T_{acq}$  est la durée d'acquisition de la mesure,  $\epsilon_r$  est le rendement d'absorption totale de la radiation  $r$  et  $P_r$  est la probabilité d'émission de la radiation  $r$ .

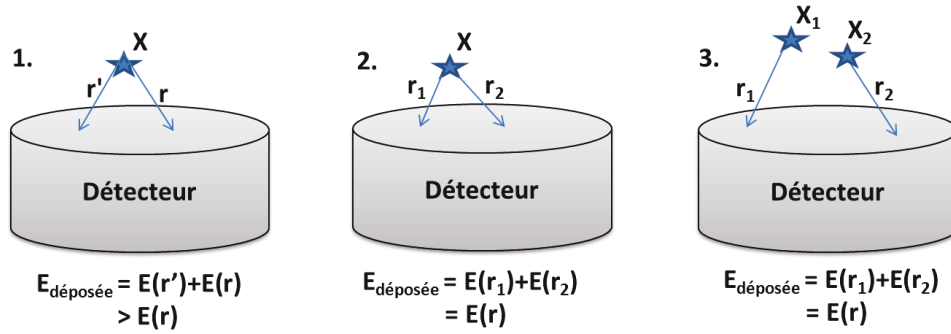
Si on note  $t_{1/2}$  la période de  $X$ , alors :

$$c_d = e^{\ln(2)\Delta T/t_{1/2}} ; \quad (1.34)$$

et

$$c_m = \frac{\ln(2)T_{acq}/t_{1/2}}{1 - e^{-\ln(2)T_{acq}/t_{1/2}}} ; \quad (1.35)$$

où  $\Delta T$  est l'intervalle de temps entre la date de référence et le début de la mesure.



**Figure 1.12** – Schéma illustrant le phénomène de sommation de radiations durant la mesure. Sur ce schéma :  $X$ ,  $X_1$  et  $X_2$  sont des radionucléides qui se désintègrent ;  $r'$ ,  $r$ ,  $r_1$  et  $r_2$  sont les radiations qu'ils émettent lors de cette désintégration. Les cas 1. et 2. correspondent à deux versions du cas de figure de sommations vraies, le cas 3. correspond au cas de figure de sommations fortuites. Le cas 1. diminue fictivement le comptage dans la ROI de  $r$ , les cas 2. et 3. augmentent fictivement le comptage dans la ROI de  $r$ .

La correction de sommation durant la mesure permet de corriger  $N_{\text{net}}$  du phénomène de sommation de particules durant la mesure. Ce phénomène de sommation correspond à deux cas de figures, la sommation vraie ( $c_{s,v}$ ) et la sommation fortuite ( $c_{s,f}$ ), illustrés en figure 1.12. Ces deux cas de figure correspondent à (en notant  $c_s = c_{s,v}c_{s,f}$ ) : (i) l'absorption simultanée d'au moins deux radiations en cascade de  $X$ , on parle alors de sommation "vraie" (on a  $(c_{s,v} \geq 1)$  si  $r$  est détectée simultanément avec une autre radiation, et  $(c_{s,v} \leq 1)$  si deux radiations absorbées simultanément engendrent un événement similaire à  $r$ ) , (ii) la détection fortuite de plusieurs particules (on a systématiquement  $c_{s,f} \geq 1$ ). Le phénomène de sommation fortuite étant directement relié au taux de comptage (et donc à l'activité de l'échantillon), il est courant de le négliger lors de la mesure de traces de radioactivité.

Enfin, l'Activité Minimale Détectable ( $AMD$ ) d'un radionucléide donné, pendant une mesure d'une durée  $T_{\text{acq}}$  avec un spectromètre est calculée en combinant les équations 1.17 et 1.33 lorsque  $L_D$  est calculée sur la région d'intérêt de  $X$ . Ainsi,

$$AMD = c_m c_s \frac{L_D}{T_{\text{acq}} \varepsilon_r P_r} \quad (1.36)$$

### 1.5.1 Les laboratoires de mesure de traces de radioactivité

Les systèmes classiques de mesure des traces de radioactivité sont : (i) les spectromètres  $\alpha$ , (ii) les compteurs  $\alpha/\beta$  totaux, et (iii) les spectromètres  $\gamma$ . Ces instruments sont généralement entourés d'une enceinte de plomb. Dans le cas des mesures bas niveau, ils peuvent être installés dans des laboratoires souterrains afin de s'affranchir du bruit de fond d'origine cosmique. Le tableau 1.9 donne un aperçu de ces laboratoires, et des mesures qui peuvent y être effectuées. Plus un laboratoire est localisé en profondeur, plus la part de

Profondeur (m.w.e.)	Laboratoire	Bruit de fond intégral (s <sup>-1</sup> /kg(Ge))	Référence
1	Seibersdorf	0,18	Schwaiger <i>et al.</i> (2002)
1	Daejon	0,23	Koehler <i>et al.</i> (2009)
1	CITIUS	1,0	Hurtado <i>et al.</i> (2006)
2	CEA- LRBN/FRL08-001	8,98.10 <sup>-2</sup>	
4	CEA-LNHB	0,13	Ferreux <i>et al.</i> (2009)
4,8	LBF-LBNL	8,9.10 <sup>-2</sup>	Thomas <i>et al.</i> (2013)
6	CENBG	1,6.10 <sup>-1</sup>	Perrot <i>et al.</i> (2012)
7,95	IRSN	1,3.10 <sup>-1</sup>	de Vismes Ott <i>et al.</i> (2012)
10	Garching	5,9.10 <sup>-2</sup>	Hofmann <i>et al.</i> (2013)
15	MPI-Heidelberg	3,0.10 <sup>-2</sup>	Heusser (1993)
15	MPI-K 2013	3,4.10 <sup>-2</sup>	Heusser <i>et al.</i> (2013)
33	NYSDOH	1,5.10 <sup>-2</sup>	Haines <i>et al.</i> (2011)
35	IAEA-MEL	1,6.10 <sup>-2</sup>	Povinec <i>et al.</i> (2004)
110	Felsenkeller	3,4.10 <sup>-2</sup>	Koehler <i>et al.</i> (2009)
215	LAFARA	6,2.10 <sup>-2</sup>	van Beek <i>et al.</i> (2013)
500	HADES-Sandwich	2,6.10 <sup>-3</sup>	Wieslander <i>et al.</i> (2009)
3800	GeMPI@Gran Sasso	3,0.10 <sup>-4</sup>	Heusser <i>et al.</i> (2013)
4800	Modane	6,3.10 <sup>-3</sup>	

**Tableau 1.9** – Relevé non exhaustif du bruit de fond de différents laboratoires (de profondeur variable) impliqués dans la mesure de traces de radioactivité.

bruit de fond due aux particules cosmiques est faible. L'avantage de telles installations est néanmoins modéré par la complexité du maintien en conditions opérationnelles de tels systèmes.

Afin de maintenir des bonnes performances de mesure de traces de radioactivité tout en conservant une facilité d'utilisation, plusieurs projets de recherche ont été consacrés à la mise en place de techniques avancées de mesure. Par la suite, l'étude s'intéresse à la mise en place de mesure de coïncidences en acquisition numérique, en opposition avec les

mesures de coïncidences analogiques classiques.

### 1.5.2 Techniques avancées de mesure de radioactivité

Parmi celles-ci, on notera la mise en place de coïncidences  $\gamma/\gamma$  dans différentes applications. Dans l'étude de Konki *et al.* (2012), les auteurs montrent que l'utilisation de plusieurs détecteurs HPGe en coïncidence permet d'améliorer significativement l'analyse d'échantillons environnementaux complexes (tels que les filtres de prélèvement des particules atmosphériques, ou aérosols). En particulier, ils améliorent les Activités Minimales Détectables (AMD) du  $^{134}\text{Cs}$ ,  $^{22}\text{Na}$  et  $^{60}\text{Co}$  d'un facteur 4, 4,4 et 8,9 respectivement.

Pour la mesure des filtres de prélèvement des particules atmosphériques, l'étude de Keillor *et al.* (2011) annonce la mise en place d'un spectromètre constitué de 14 cristaux de germanium. Ce spectromètre a été développé pour effectuer des mesures à haut rendement ou en coïncidence. Dans la même thématique, une étude de Zhang *et al.* (2014) met en œuvre des détecteurs BGO (basse résolution) en coïncidence pour la mesure du  $^7\text{Be}$  et du  $^{22}\text{Na}$ . Les auteurs montrent l'amélioration des activités minimales détectables pour ces radionucléides (3 mBq pour le  $^{22}\text{Na}$  sur une mesure de 20h).

Dans le domaine de la criminalistique nucléaire, plusieurs équipes (pour des mesures à basse résolution en énergie : Zhang *et al.* (2011a) et Zhang *et al.* (2011b); pour des mesures à haute résolution : Horne *et al.* (2014)) montrent que des mesures en coïncidence permettent la quantification rapide de certains isotopes de l'uranium ou encore que l'enrichissement en uranium d'un échantillon peut être déterminé par son empreinte dans un spectre de coïncidences  $\gamma/\gamma$ . Dans une thématique plus générale, des travaux supplémentaires sont à retenir concernant l'étude et la mise en place de mesures de coïncidences  $\gamma/\gamma$ , tels que ceux de Burnett et Davies (2011) ou encore Britton *et al.* (2014) ainsi que les travaux de thèse de S. M. Horne (Horne (2013)). Dans cette thèse, la thématique des mesures en coïncidence  $\gamma/\gamma$  est abordée pour dans le cadre de la mesure du  $^{60}\text{Co}$  et de  $^{88}\text{Y}$ .

Parmi les développements récents en spectrométrie de coïncidence, on notera aussi l'étude de Jurado Vargas *et al.* (2013) sur la mise en place de coïncidences à haute résolution  $\alpha/\text{photon}$  pour la mesure de  $^{241}\text{Am}$  à l'aide de détecteurs au germanium et au silicium.

Enfin, le travail de thèse de S. Ihantola (voir Ihantola (2013)) a porté sur la mise en place de spectrométrie en coïncidence  $\alpha/\gamma$  ou UV/ $\gamma$ . Les mesures en coïncidence UV/ $\gamma$  sont une extension des mesures  $\alpha/\gamma$ . En effet, la détection des particules  $\alpha$  nécessite une mise sous vide de l'échantillon et du système de détection, afin qu'elles ne soient pas absorbées par le gaz lors de leur déplacement vers le système de détection. Dans le cas d'une mesure dans l'air, les particules  $\alpha$  vont émettre des photons UV lors de leur absorption. C'est avec ces photons que la coïncidence est effectuée. Un tel système combine donc deux avantages : (i) un niveau de détection particulièrement bas pour les émetteurs  $\alpha/\gamma$ , et (ii) la possibilité d'effectuer une spectrométrie  $\gamma$  localisée.

### 1.5.3 La détection de radionucléides dans le cadre du TICE



**Figure 1.13** – Stations Particule de la composante radionucléide du Système de Surveillance International pour le TICE. État du réseau en janvier 2014. Vert : station opérationnelle. Rouge : station non-opérationnelle. Source : [www.ctbto.org](http://www.ctbto.org).

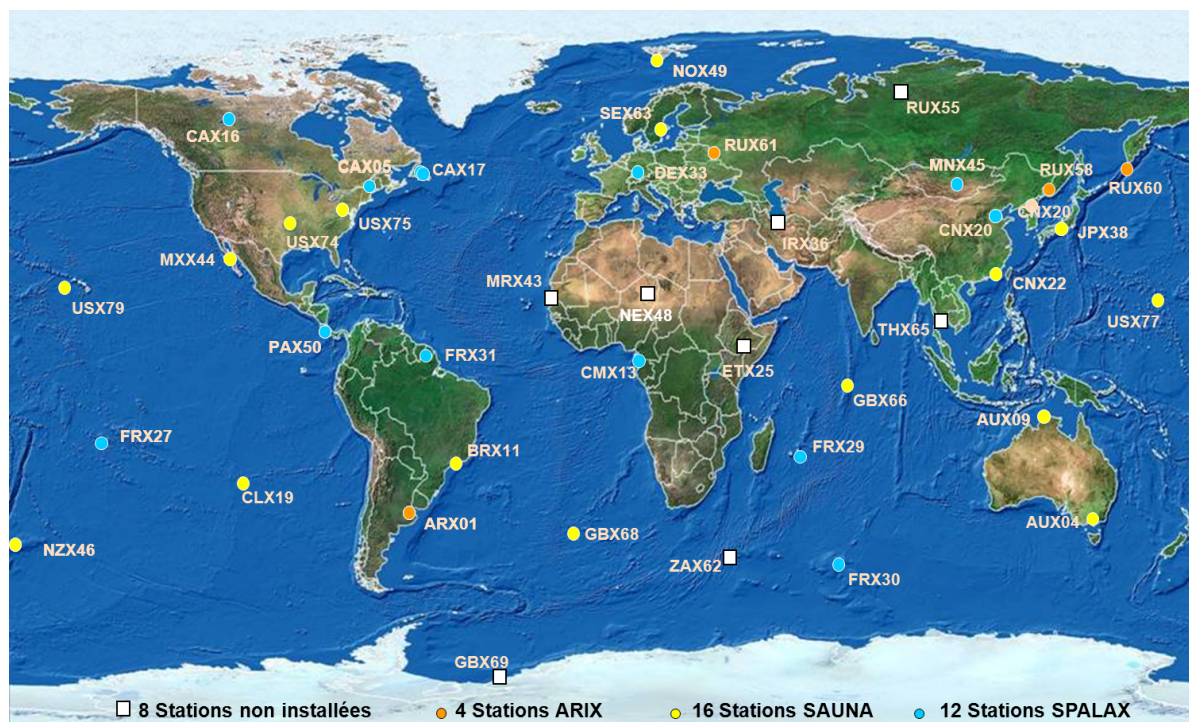
La composante radionucléide du Système de Surveillance International du TICE est constituée de stations de mesure des particules atmosphériques (ou aérosols) radioactifs, de stations de mesure de gaz noble dans l'air et de laboratoires certifiés (voir figures 1.13 et 1.14).

Les stations de mesure particules mesurent l'activité atmosphérique des radionucléides d'intérêts définis par le TICE. Une station radionucléide aspire environ 20 000 m<sup>3</sup> d'air pendant 24h à travers un filtre. Ensuite, afin de se débarrasser des descendants des <sup>220</sup>Rn et <sup>222</sup>Rn, ce filtre "frais" est laissé au repos pendant 24 h. Après cela, le spectre d'émission  $\gamma$  de ce filtre est acquis par un spectromètre HPGe pendant 24 h et les spectres d'acquisition sont transmis au Centre International de Données (situé à Vienne en Autriche). Ces données peuvent être consultées par tous les pays signataires du traité.

En cas d'échantillon suspect ou sur demande d'un pays signataire du traité, celui-ci peut être expertisé par un laboratoire certifié du TICE. Il y a en tout onze laboratoires certifiés du TICE, dont le laboratoire FRL08 installé au CEA/DAM-Ile de France.

Les stations gaz noble produisent des échantillons de radioxénon toutes les 12 h (pour les stations SAUNA) ou 24 h (pour les stations SPALAX). Elles mesurent l'activité atmosphérique des 4 radioxénon d'intérêt. Trois technologies sont déployées : les stations SAUNA ont été développées par la Suède (Ringbom *et al.* (2003)), les stations ARIX ont





**Figure 1.14** – Stations Gaz Noble de la composante radionucléide du Système de Surveillance International pour le TICE. État du réseau en janvier 2014. [www.ctbto.org](http://www.ctbto.org).

été développées par la Russie (Prelovskii *et al.* (2007)) et les stations SPALAX ont été développées par la France (Fontaine *et al.* (2004)). Ces trois technologies mettent en œuvre deux parties : (i) le procédé pour concentrer et purifier le xénon contenu dans l'air, et (ii) la cellule de détection pour en effectuer la spectrométrie du gaz produit par le procédé.

Les différents procédés des technologies de mesure gaz ne sont pas toutes détaillées. En ce qui concerne une station SPALAX, le procédé :

- c'est au total environ 80 m<sup>3</sup> d'air qui sont prélevés sur 24h et purifiés pour produire un échantillon de gaz de 25 cm<sup>3</sup> contenant un mélange d'azote et de xénon.
- le xénon a été concentré sur des adsorbants car sa teneur passe (en volume) de 0,087 ppm (partie par million) dans l'air à 15 % dans la cellule de mesure.
- cet échantillon est purifié car en terme de radionucléides, il ne contient (potentiellement) que : (i) les quatre radionucléides d'intérêts (<sup>131m</sup>Xe, <sup>133m</sup>Xe, <sup>133</sup>Xe, <sup>135</sup>Xe) et (ii) le <sup>222</sup>Rn et ses descendants. Le <sup>220</sup>Rn et ses descendants ne sont pas présents dans l'échantillon produit. En effet, de part sa période radioactive, tous les noyaux de <sup>220</sup>Rn se désintègrent durant les étapes de concentrations et de purification de l'échantillon (qui durent environ 24 h).

En terme de détection, les stations ARIX et SAUNA mettent en œuvre une spectrométrie de coïncidence photon/électron à l'aide de détecteurs à scintillation (inorganique pour la détection des photons et organique pour la détection des électrons), tandis que les stations SPALAX effectuent une spectrométrie d'émission  $\gamma$  haute résolution à l'aide d'un détecteur HPGe :

- Le système de détection d'une station SAUNA est constitué d'une cellule cylindrique (de 6,35 mm de rayon et 50,8 mm de longueur) contenant le gaz radioactif, entourée de 1 mm de plastique scintillant (BC-404). Cette épaisseur de plastique permet l'absorption complète d'électrons de 346 keV (énergie maximale des électrons  $\beta^-$  du  $^{133}\text{Xe}$ ) tout en limitant l'absorption des photons. Cet ensemble est inséré dans un scintillateur inorganique NaI(Tl) de 12,7 cm d'épaisseur pour la détection des photons. Ce système est placé dans un blindage constitué de 5 cm de plomb en couche externe et 5 mm de cuivre en couche interne. Le volume de gaz total de la cellule de mesure est de 6,44 cm<sup>3</sup> ; la composition du gaz est typiquement de 99,5 % d'hélium et 0,5 % de xénon.
- Le système de détection d'une station ARIX est équipé d'un cristal de NaI(Tl) puits couplé à un scintillateur plastique cylindrique. Le scintillateur plastique est constitué de BC-404. Cette géométrie de mesure est assez proche de celle du SAUNA.
- Le système de détection d'une station SPALAX est constitué d'une cellule gaz en aluminium ultrapur (appelée cellule de mesure SPALAX) placée sur un détecteur HPGe de type BEGe5030 fourni par la société Canberra. La cellule gaz est un cylindre de rayon égal à 33 mm et de hauteur égale à 11 mm, pour un volume total de 25 cm<sup>3</sup>. L'épaisseur d'aluminium sur la face en regard du détecteur HPGe est minimisée (0,7 mm) afin de diminuer l'absorption des rayons X. La composition massique du gaz échantillon est typiquement de 30 % de xénon et 70 % de diazote.

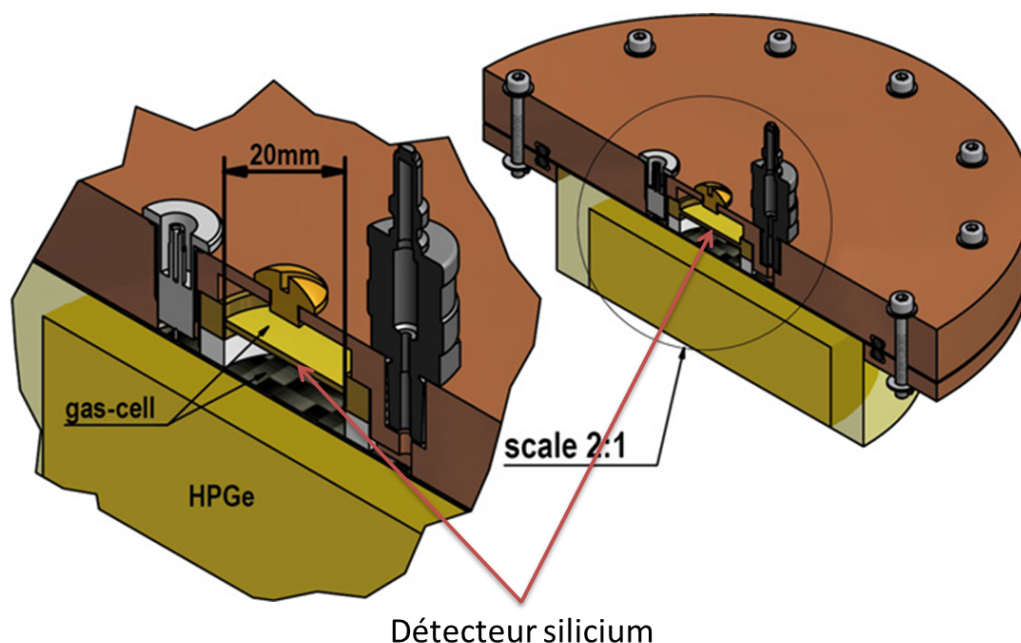
Isotope	Activité Minimale Détectable (en mBq)	Durée d'acquisition (en jours)
$^{131m}\text{Xe}$	5	6
$^{133m}\text{Xe}$	5	6
$^{133}\text{Xe}$	5	6
$^{135}\text{Xe}$	15	2

**Tableau 1.10** – Critères de certification du TICE pour l'expertise des échantillons de station Gaz Noble (cf. CTBTO (1996)).

Comme dans le cas des filtres de prélèvement des particules atmosphériques, un pays signataire du TICE peut demander l'expertise par un laboratoire certifié d'un échantillon de mesure Gaz Noble. Les critères de certifications du TICE pour qu'un laboratoire soit certifié en mesure de gaz nobles sont données dans le tableau 1.10. Ces critères sont assez drastiques, et à ce jour il n'y a qu'un seul laboratoire certifié pour l'expertise des échantillons de station Gaz Noble.

La mesure des radionobles à l'échelle de trace (*i.e.* aux ordres de grandeurs définis dans le tableau 1.10) en laboratoire et en station est complexe. Afin d'améliorer ces mesures, plusieurs spectromètres dédiés à la mesure des radionobles sont actuellement en développement. Ces développements se divisent en deux catégories principales : les systèmes de

détection par scintillateurs organiques ou inorganiques, et les systèmes de détection par semi-conducteurs. Parmi ceux-ci, on retiendra le PhosWatch (Henning *et al.* (2009), Farsoni *et al.* (2011) et Farsoni *et al.* (2012)), un spectromètre utilisant un détecteur HPGe couplé à un détecteur au silicium de type SSB (Silicon Surface Barrier, voir figure 1.15 et Schroettner *et al.* (2010)), et un détecteur utilisant plusieurs détecteurs au silicium de type Si-PIN (Henning *et al.* (2012a) et Henning *et al.* (2012b)). L'équipe russe ayant développé le système ARIX s'intéresse à un système de détection couplant semi-conducteur et scintillateur inorganique.



**Figure 1.15** – Schéma du prototype combinant détecteur HPGe et détecteur Silicium (de type SBB) présenté dans Schroettner *et al.* (2010).

Les systèmes mettant en œuvre des détecteurs à scintillation bénéficient d'un rendement de détection de détection supérieur aux systèmes à diodes semi-conductrices. En revanche :

- La basse résolution en énergie électron de ces systèmes empêche la séparation optimale des pics d'électrons de conversion de couche K émis par les radioxénons, en particulier entre l'émission du  $^{131m}\text{Xe}$  et celle du  $^{133m}\text{Xe}$ .
- La basse résolution en énergie photon de ces systèmes entraîne une mauvaise séparation des pics d'émissions de photon K-X des radioxénons. En effet, l'énergie des photons  $K\alpha$ -X du xénon (émis par les  $^{131m,133m}\text{Xe}$ ) est de 29,7 keV et celle des photons  $K\alpha$ -X du césium (émis par les  $^{133,135}\text{Xe}$ ) sont de 30,9 keV. Or les  $^{131m,133m}\text{Xe}$  sont quantifiés sur le comptage dans la *ROI* correspondant à leur coïncidence  $K\alpha$ -X/K-CE. En conséquence les régions d'intérêt de détection des  $^{131m,133m}\text{Xe}$  sont interférées par les émissions en coïncidence  $K\alpha$ -X/ $\beta^-$  des  $^{133,135}\text{Xe}$ .
- De plus, à plus haute énergie du spectre photon, la résolution en énergie des scintillateurs inorganiques ne permet pas la séparation des émissions  $\gamma$  du  $^{135}\text{Xe}$  (à

249,8 keV) et  $\gamma$  du  $^{214}\text{Pb}$  (à 242,0 keV). Cela entraîne un recouvrement des régions d'intérêt  $\gamma/\beta^-$  des  $^{135}\text{Xe}$  et  $^{214}\text{Pb}$ .

- Enfin, le xénon diffuse dans le plastique scintillant, ce qui provoque un "effet mémoire" du spectromètre. L'effet mémoire est la contamination d'un échantillon (en cours de mesure) par les échantillons mesuré précédemment. Des développements sont en cours afin de réduire cet effet, comme par exemple la mise en place d'une fine couche (de quelques nanomètres) d'oxyde d'aluminium (voir Bläckberg *et al.* (2014)).

En ce qui concerne la cellule gaz du système de détection SPALAX, celle-ci est faite uniquement en aluminium. Ainsi l'effet mémoire du système SPALAX est nul. De plus, l'analyse des mesures issues des stations SPALAX est facilitée car il existe un large panel d'outils commerciaux d'analyse des spectres d'émissions  $\gamma$ . En revanche, les probabilités d'émission  $\gamma$  des  $^{131m},^{133m}\text{Xe}$  étant faibles (cf tableau 1.8), les limites de détection de ces deux radionucléides sont fortement dégradées.

En prenant le soin d'éviter au maximum les parties plastiques (où le xénon serait susceptible de diffuser), le système de détection à semi-conducteur germanium/silicium proposé par Schroettner *et al.* (2010) et illustré en figure 1.15 ne présente aucun des défauts cités ci-dessus. En revanche, il présente l'inconvénient d'avoir un rendement de détection des radionucléides assez faible comme illustré dans le tableau 1.11.

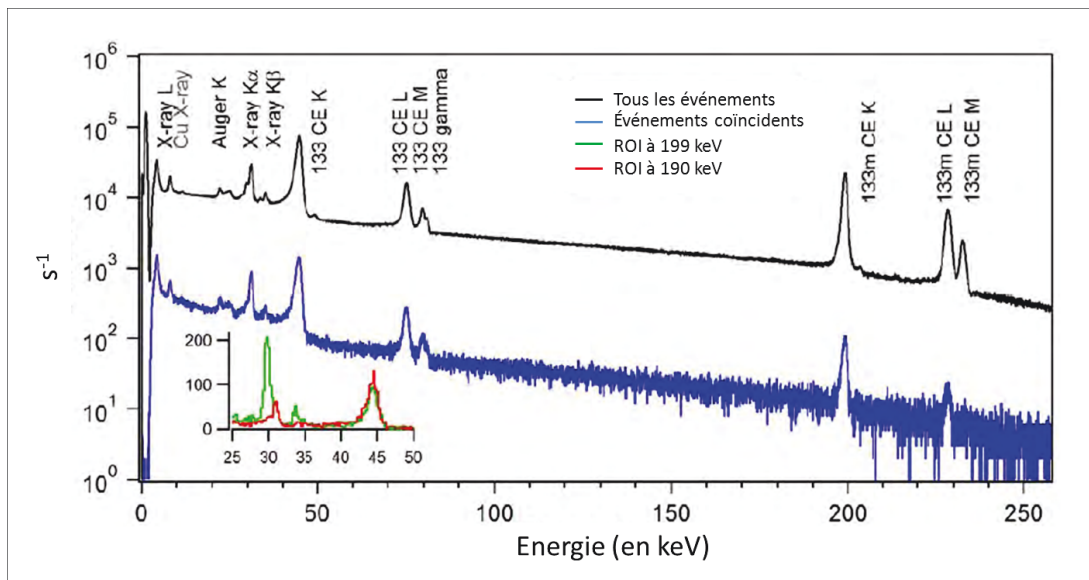
Isotope	ROI (photon/électron)	Rendements de détection (en $\text{s}^{-1}/\text{kBq}$ )
$^{131m}\text{Xe}$	29,7 keV / 129 keV	7,4
$^{133m}\text{Xe}$	29,7 keV / 199 keV	10,2
$^{133}\text{Xe}$	81 keV / 0-346 keV	13,4
$^{135}\text{Xe}$	249 keV / 0-905 keV	23,6

**Tableau 1.11** – Rendements de détection des radionucléides pour le détecteur HPGe/Silicium SSB développé par Schroettner *et al.* (2010).

Les systèmes de détection utilisant uniquement des détecteurs au silicium semblent à première vue prometteurs (cf. Henning *et al.* (2012a) et Henning *et al.* (2012b)). En effet, tous les radionucléides d'intérêt sont émetteurs d'électrons de conversion. Il est donc possible de quantifier de façon unique un radionucléide à partir d'une de ces émissions. Cependant, en mesure environnementale, un échantillon contient fréquemment plusieurs radionucléides émetteurs  $\beta^-$  ( $^{133},^{135}\text{Xe}$ ,  $^{214}\text{Pb}$  ou  $^{214}\text{Bi}$ ). Or, ces électrons  $\beta^-$  ont un spectre continu réparti sur toute la gamme énergétique de détection des électrons. Ces émissions  $\beta^-$  vont augmenter les comptages dans les régions d'intérêts des émissions d'électrons de conversions des radionucléides, ce qui dégrade très fortement la limite de détection de ces derniers.

Afin d'illustrer ce point, les auteurs présentent en figure 1.16 le spectre de mesure d'un

mélange  $^{133m,133}\text{Xe}$ . Le détecteur est un cube de 1 cm de côté, dont deux cotés se faisant face sont équipés chacun d'un détecteur Si-PIN de 25 mm<sup>2</sup>. La courbe noire représente la somme des deux spectres mesurés. La courbe bleue représente le spectre des événements mesurés dans un détecteur Si-PIN en coïncidence avec les événements mesurés dans un autre détecteur Si-PIN. La courbe verte correspond aux événements mesurés dans un détecteur Si-PIN en coïncidence avec les événements à 199 keV (ceux-ci étant en majorité imputables aux électrons de conversion K du  $^{133m}\text{Xe}$ ) mesurés par un autre détecteur Si-PIN, et la courbe rouge aux événements mesurés en coïncidence avec les événements à 190 keV (ceux-ci étant en majorité imputables aux électrons  $\beta^-$  du  $^{133}\text{Xe}$ ). On remarque qu'aussi bien sur la courbe noire que sur la courbe bleue, le fond  $\beta^-$  du  $^{133}\text{Xe}$  est conséquent. De plus, sur la courbe verte, le pic à 45 keV (correspondant aux électrons de conversion du  $^{133}\text{Xe}$ ) indique qu'on observe clairement des événements liés au  $^{133}\text{Xe}$  dans la région d'intérêt du  $^{133m}\text{Xe}$ . Ces deux observations soulignent que l'activité en  $^{133}\text{Xe}$  perturbe la mesure de  $^{133m}\text{Xe}$ , aussi bien dans le cas de mesure directe (courbe noire), qu'en mesure de coïncidence électron/électron (courbes bleue, verte et rouge).



**Figure 1.16** – Spectre d'émission en électrons d'un mélange  $^{133m,133}\text{Xe}$  obtenu à l'aide du détecteur décrit dans Henning *et al.* (2012b). Cette figure illustre que les mesures d'électron (en direct ou en coïncidence électron/électron) ne sont pas adaptées à la mesure d'échantillons contenant plusieurs radionucléides à l'échelle de traces.

Ainsi, pour faire la synthèse des différentes informations concernant la mise en place de systèmes de détection dédiés à la mesure des traces de radionucléides, on retiendra que :

- la mesure directe ou en coïncidence en électrons à haute ou basse résolution en énergie n'est pas optimale puisque certains radionucléides potentiellement présents sont émetteurs  $\beta^-$  (cf. figure 1.16).
- la mesure directe par émission  $\gamma$  n'est pas optimale non plus, puisque les faibles probabilités d'émission  $\gamma$  des  $^{131m,133m}\text{Xe}$  imposent des activités minimales détectables supérieures à ce qui peut être obtenu en mesure par coïncidence photon/électron.

- la mesure en coïncidence photon/électron à basse résolution en énergie apporte des résultats satisfaisants en termes de rendement de détection, mais présente deux inconvénients majeurs : (i) l'effet mémoire (mais des développements sont en cours pour le réduire) et (ii) les interférences entre radionucléides (entre les différents radioxénons, et entre les radioxénons et les descendants du radon). Cette dernière difficulté semble être structurellement difficile à surmonter pour des détecteurs à basse résolution en énergie.
- l'utilisation de détecteurs à haute résolution en énergie électron est nécessaire pour séparer  $^{131m}\text{Xe}$  et  $^{133m}\text{Xe}$ . L'utilisation d'un détecteur à haute résolution en énergie photon est nécessaire pour séparer : (i) les différentes émissions de photons K-X des radioxénons, (ii) les pics d'émissions de photons  $\gamma$  du  $^{135}\text{Xe}$  et du  $^{214}\text{Pb}$ , ainsi que (iii) les pics d'émissions de photons  $\gamma$  du  $^{133}\text{Xe}$  des pics d'émissions de photons K-X du  $^{214}\text{Pb}$  et du  $^{214}\text{Bi}$ .

En conclusion, pour des performances optimales, il est donc préférable de s'équiper d'un système de détection en coïncidence photon/électron haute résolution en énergie, en prenant soin d'éviter au maximum les composants plastiques au contact du gaz radioactif (afin de minimiser l'effet mémoire du dispositif), et en optimisant au maximum les rendements de détection.

## 1.6 Problématique

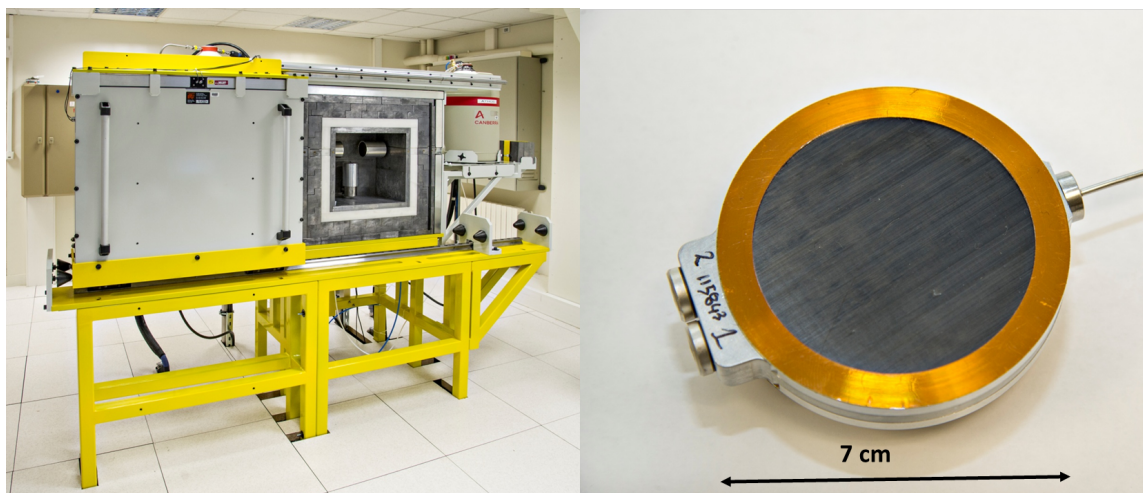
Les mesures de traces de radioactivité sont longues et nécessitent parfois l'utilisation d'installations souterraines. Mais elles sont isolées ce qui complique le maintien en conditions opérationnelles. De plus, la spectrométrie directe d'émission  $\gamma$  est insuffisante lorsqu'il s'agit de rechercher et mesurer des radionucléides à l'état de traces dans un échantillon actif. On relève de nombreux développements dans le but d'améliorer les capacités de mesure des traces de produits de fission : amélioration des dispositifs de veto cosmique, amélioration des blindages, mise en place de mesures de coïncidence variées, etc.

Ces points soulignent la nécessité de développer un instrument facile d'accès et multifonctions permettant des analyses plus rapides et plus fines que les instruments actuels pour la mesure des traces de radionucléides marqueurs d'un essai nucléaire. Pour cela, il a été décidé d'équiper le CEA/DAM d'un spectromètre multi-détecteurs à très bas bruit de fond :

- installé en surface,
- équipé d'un blindage optimisé afin de réduire au maximum le bruit de fond environnemental de mesure,
- capable de mesurer de façon optimale différentes géométries d'échantillons,
- capable d'effectuer des mesures de coïncidence,



- et surtout adapté à la thématiques des mesures de traces des radionucléides d'intérêt du TICE (et en particulier des radioxénons).



**Figure 1.17** – Photographies du spectromètre GAMMA<sup>3</sup> (à gauche) et du détecteur PIPSbox (à droite).

Ce travail de thèse a eu pour but : (i) le suivi de conception et de réalisation de ce spectromètre, sa mise en fonctionnement, et la mise en œuvre des chaînes numériques d'acquisition et de traitement ; (ii) la mise en place puis l'étude des mesures directes ou de coïncidences photon/électron et photon/photon et l'étude des bruits de fond de ces différentes mesures, et enfin (iii) à partir de ces études, les performances obtenues pour la mesure des traces de radionucléides indicateurs d'essais nucléaires ont été évaluées et comparées avec les systèmes existants.

Ce spectromètre, illustré en figure 1.17, a la capacité d'effectuer des mesures directes ou en coïncidence. Baptisé GAMMA<sup>3</sup>, il comporte trois composantes majeures : un blindage optimisé (cf. image de gauche de la figure 1.17), un ensemble de trois détecteurs au germanium et une cellule de mesure gaz équipée de deux détecteurs au silicium (la PIPSbox, cf. image de droite de la figure 1.17). Pour l'évaluation de ses performances, des campagnes de mesure d'étalons de radioactivité, d'échantillons environnementaux ou de bruit de fond ont été menées. En parallèle à celles-ci, différentes configurations de mesures (*i.e* mesures en direct/en coïncidence, différentes géométries de mesures, différentes compositions d'échantillon) ont été étudiées par simulation Monte-Carlo. Ce manuscrit présente ces travaux. En particulier, le chapitre 2 traite des performances de bruit de fond et de mesures en direct et le chapitre 3 traite des mesures en coïncidences.

# Chapitre 2

## Développement d'un spectromètre à très bas bruit de fond

### Table des matières

---

<b>2.1</b>	<b>Choix des détecteurs . . . . .</b>	<b>52</b>
2.1.1	Détecteurs au germanium . . . . .	52
2.1.2	Le détecteur PIPSBox . . . . .	55
2.1.3	Le blindage du spectromètre GAMMA <sup>3</sup> . . . . .	56
<b>2.2</b>	<b>Le système d'acquisition numérique . . . . .</b>	<b>58</b>
2.2.1	Fonctionnement . . . . .	58
2.2.2	Réglages . . . . .	60
<b>2.3</b>	<b>Rendements de détection des détecteurs HPGe . . . . .</b>	<b>61</b>
<b>2.4</b>	<b>Étude du bruit de fond . . . . .</b>	<b>68</b>
2.4.1	Étude du comptage intégral . . . . .	68
2.4.2	Pics caractéristiques du bruit de fond . . . . .	70
2.4.3	Interactions avec les neutrons . . . . .	74
2.4.4	Interférences liées aux descendants du radon . . . . .	76
<b>2.5</b>	<b>Gains en Activité Minimale Détectable (<i>AMD</i>) . . . . .</b>	<b>77</b>
2.5.1	En cellule de mesure gaz SPALAX . . . . .	77
2.5.2	Géométrie RASA . . . . .	79
2.5.3	Géométrie SG500 . . . . .	80
2.5.4	Gains en <i>AMD</i> : bilan . . . . .	80
<b>2.6</b>	<b>Étude des détecteurs au silicium . . . . .</b>	<b>81</b>
2.6.1	Rendements de détection pour les électrons . . . . .	82
	Rendements de détection des électrons Auger et des CE . . . . .	83
	Rendements de détection des électrons $\beta^-$ . . . . .	84
2.6.2	Rendements de détection pour les photons . . . . .	86
2.6.3	Bilan . . . . .	87

---



Du début de la rédaction des premiers cahiers des charges jusqu'à la fin de l'installation de son blindage, la conception et la réalisation du spectromètre GAMMA<sup>3</sup> a duré 16 mois. Les détecteurs ont été fournis par la société Canberra. La conception industrielle, l'usinage et la construction du château de plomb ont été effectués par la société Fonderie de Gentilly.

Ce chapitre présente les spécificités du spectromètre installé. Il traite en particulier les points suivants :

- la sélection des différents détecteurs et le blindage composant le spectromètre GAMMA<sup>3</sup> ;
- la description du système d'acquisition numérique choisi, ainsi que son fonctionnement et ses réglages ;
- l'analyse des performances métrologiques des détecteurs sélectionnés.

## 2.1 Choix des détecteurs

Cette partie traite des caractéristiques techniques des détecteurs qui composent le spectromètre GAMMA<sup>3</sup>. D'abord les choix menant à la sélection de trois détecteurs au germanium (HPGe, technologie BEGe) seront détaillés, puis l'accent sera mis sur la conception d'une cellule gaz équipée de deux détecteurs au silicium (Si-PIN, technologie PIPS), et enfin un intérêt particulier sera porté au blindage du spectromètre.

### 2.1.1 Détecteurs au germanium

90 % des radionucléides d'intérêt du TICE ont leur raie d'émission  $\gamma$  principale comprise entre 20 et 1000 keV. Pour les applications envisagées du spectromètre GAMMA<sup>3</sup>, il est donc nécessaire de privilégier des détecteurs de photons combinant une haute résolution en énergie et des rendements de détection élevés sur la gamme de 20 à 1000 keV. La technologie BEGe, proposée par la société Canberra, utilise des cristaux de germanium de géométrie plane adaptés à ces contraintes. Ces cristaux orthocylindriques ont un rayon plus important que leur épaisseur, ce qui assure un haut rendement de détection (même pour des échantillons de grande section), tout en conservant un volume total de cristal réduit (et donc une haute résolution). Afin de minimiser l'absorption des photons X par le capot des détecteurs, ceux-ci sont équipés de fenêtre d'entrée en fibre de carbone de 600  $\mu\text{m}$  d'épaisseur. Différentes installations expérimentales ont démontré le bénéfice en terme de détection de photons de l'utilisation de plusieurs détecteurs (on se référera par exemple à Tomlin *et al.* (2008), Wieslander *et al.* (2009) et Konki *et al.* (2012)).

Caractéristique	ATHOS	PORTHOS	ARAMIS
Épaisseur cristal (mm)	31,5	31,0	31,5
Rayon cristal (mm)	40,5	40,5	40,5
Fenêtre d'entrée	Carbone époxy, 600 $\mu\text{m}$	Carbone époxy, 600 $\mu\text{m}$	Carbone époxy, 600 $\mu\text{m}$
Rendement*	52,1 %	50,4 %	50,5 %
Comptage intégral de bruit de fond** sur 20-2000 keV	1,38 s <sup>-1</sup>	1,42 s <sup>-1</sup>	1,42 cp/s
Diamètre capot (mm)	101,8	95,3	101,7

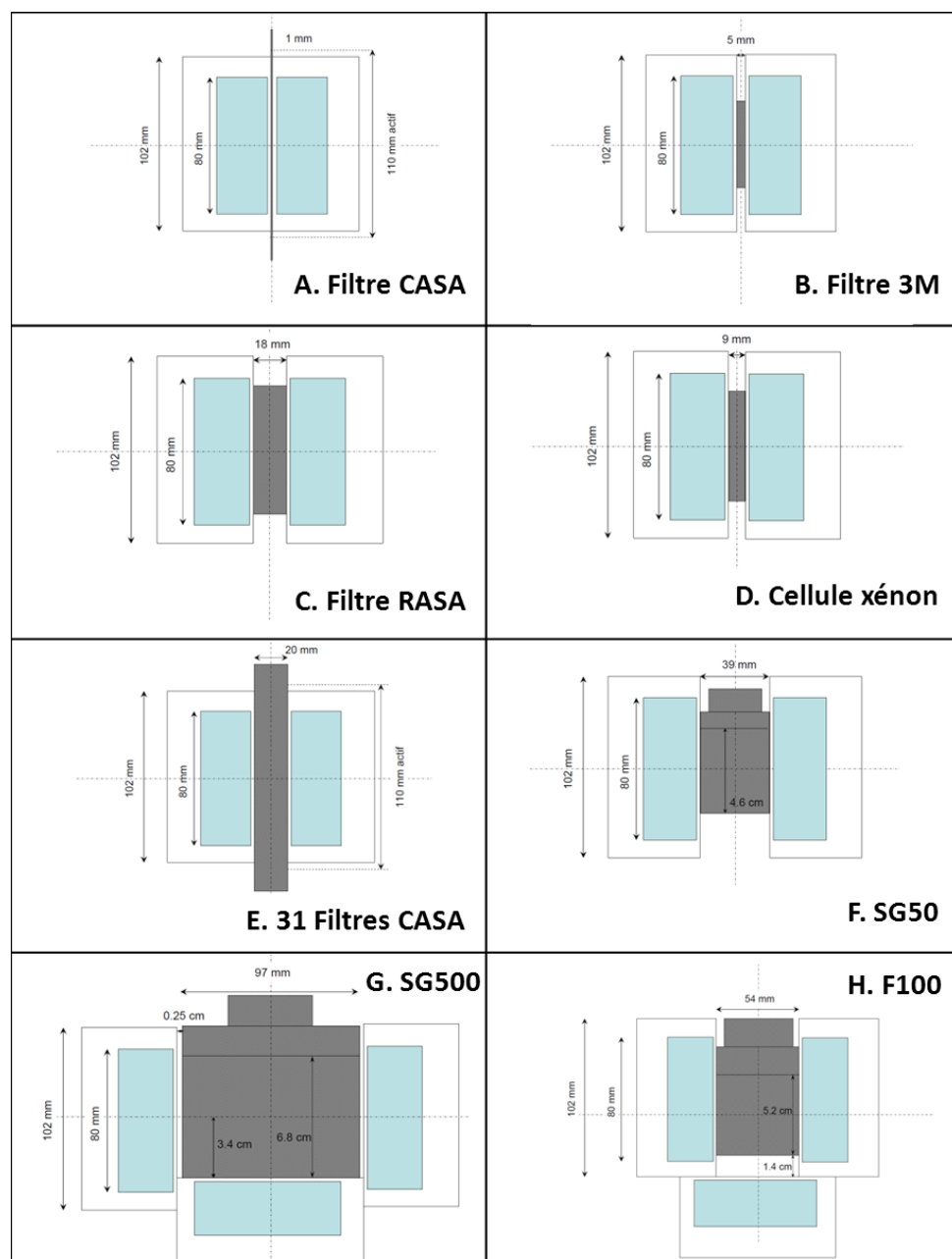
**Tableau 2.1** – Caractéristiques en recette usine des détecteurs au germanium ATHOS, PORTHOS et ARAMIS. \* : le rendement est calculé selon la norme ANSI/Std 325-1996. \*\* : ce comptage est donné sur un spectre de mesure de bruit de fond dans un blindage standard.

Détecteur	Résolution (en keV)		
	<sup>241</sup> Am (59,5 keV)	<sup>137</sup> Cs (661,7 keV)	<sup>60</sup> Co (1332,5 keV)
ATHOS	0,55	1,15	1,59
PORTHOS	0,55	1,18	1,63
ARAMIS	0,49	1,16	1,60

**Tableau 2.2** – Résolutions (FWHM) mesurées des détecteurs germanium pour trois énergies caractéristiques.

C'est pour ces raisons qu'il a été décidé de se pourvoir d'un spectromètre faisant intervenir trois détecteurs au germanium de la technologie BEGe5030P, équipés de fenêtres en fibres de carbone. Ces trois détecteurs ont été nommés ATHOS, PORTHOS et ARAMIS. Leurs caractéristiques géométriques sont détaillées dans le tableau 2.1. Les résolutions en énergie (FWHM) des détecteurs ont été calculées sur quelques pics d'intérêt et sont fournies dans le tableau 2.2. Les radiographies de ces détecteurs sont reproduites en annexes A, B et C. Ces informations sont essentielles pour configurer le modèle de simulation Monte-Carlo des détecteurs HPGe. Ces détecteurs, refroidis à l'azote liquide, sont spécialement conçus et configurés pour la mesure à bas bruit de fond : le préamplificateur est déporté au niveau du cryostat et les matériaux constitutifs (capot du détecteur, support du cristal, canne de refroidissement détecteur) sont choisis à bas bruit de fond radiologique.

Les échantillons de mesure environnementale se présentent dans des géométries standardisées. Afin d'optimiser la mesure de ces différentes géométries d'échantillons, il est possible d'optimiser la configuration de détection des trois détecteurs au germanium en les déplaçant. Les configurations à adopter lorsque l'on souhaite mesurer ces géométries standardisées sont schématisées en figure 2.1. Ainsi, les détecteurs ATHOS et ARAMIS peuvent être déplacés selon leur axe de révolution. La position verticale du détecteur PORTHOS peut-être ajustée à la hauteur des détecteurs ATHOS et ARAMIS, de même qu'il peut être déporté hors de l'axe de mesure de ces derniers. Une étude prospective menée au CEA/DAM (voir Jutier et Douysset (2012)) a montré que pour certaines de ces



**Figure 2.1** – Schémas des différentes géométries d'échantillons environnementaux, et leurs configurations de mesures associées. Les échantillons sont en gris, tandis que les cristaux de germanium sont en bleu ciel. Les échantillons A, B, C et E sont des filtres atmosphériques (utilisés pour le piégeage des aérosols), qui se présentent sous forme de disques. Les échantillons F, G et H sont des échantillons volumiques qui se présentent sous forme de cylindres.

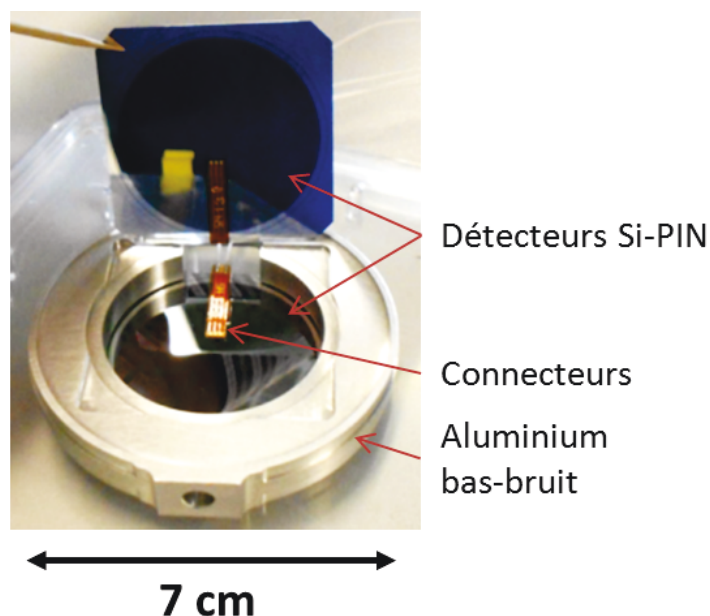
géométries standards, l'utilisation de trois spectromètres HPGe permettait d'augmenter significativement le rendement de détection. En particulier, pour les géométries de mesures telles que celles illustrées en figure 2.1, les simulations Monte-Carlo (MCNP-4C) présentées dans l'étude montrent que :

- l'utilisation de deux détecteurs au germanium face à face permettait de doubler le rendement de détection des géométries de mesure RASA et 3M. Ces deux géométries

correspondent à la mesure de filtres de prélèvement des aérosols atmosphériques compressés.

- L'utilisation de deux détecteurs au germanium face à face permettrait de gagner un facteur compris entre 2,1 et 1,9 (en fonction de l'énergie du rayonnement  $\gamma$  considéré) sur le rendement de détection des géométries F100 et SG50. Ces géométries correspondent à la mesure de petits volumes d'échantillons solide ou liquide (respectivement 100 et 50 mL).
- L'utilisation de trois détecteurs au germanium, tels que proposé sur la figure 2.1, permettrait de gagner un facteur compris entre 2,35 et 2,45 (en fonction du positionnement du détecteur situé en-dessous de l'échantillon) sur le rendement de détection du SG500. Cette géométrie correspond à la mesure de volumes de 500 mL d'échantillons solides ou liquides.

### 2.1.2 Le détecteur PIPSBox



**Figure 2.2** – Photographie de l'intérieur de la PIPSBox.

Comme cela a été expliqué dans le chapitre précédent, les mesures de coïncidence haute-résolution photon/électron permettent une spectrométrie optimale des radionucléides. Afin d'effectuer de telles mesures, une cellule de mesure gaz équipée de deux détecteurs à électrons a été développée. Cette cellule est appelée le détecteur PIPSBox. Une vue du détecteur PIPSBox est fournie sur la figure 1.17 à droite. Une photo de l'intérieur du détecteur PIPSBox est présentée en figure 2.2.

Les détecteurs d'électrons sont deux plaques de silicium passivées (des détecteurs Si-PIN de technologie PIPS, produits par la société Canberra), dont la surface active est de

1200 mm<sup>2</sup>, l'épaisseur active de 500  $\mu\text{m}$ . Elles sont espacées de 7,6 mm. Ces paramètres correspondent à un compromis entre :

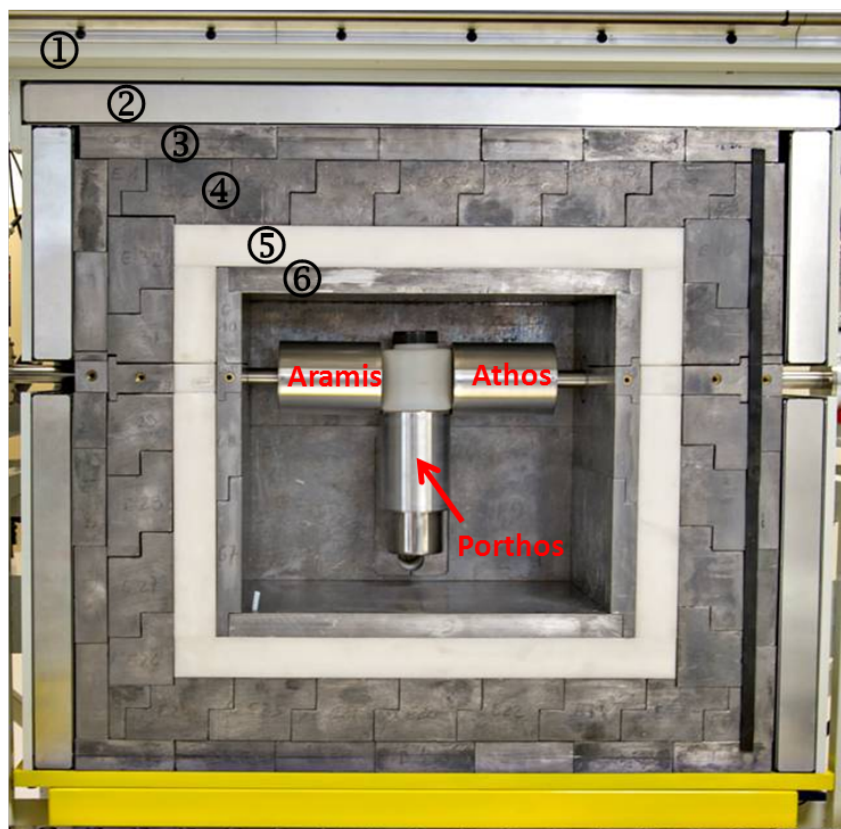
- Le volume de gaz compris entre les deux détecteurs. Ce volume est le produit de la surface active et de l'espacement entre les détecteurs. Il est souhaitable qu'il soit le plus important possible.
- Le dépôt d'énergie des électrons dans le gaz qui dépend de l'espacement et qui dégrade la résolution en énergie des pics d'émission d'électron de conversion.
- La résolution en énergie des détecteurs PIPS, qui est fonction de leur surface active et de leur épaisseur. Plus un détecteur PIPS est large ou plus il est fin et plus son courant de fuite augmente, ce qui dégrade sa résolution en énergie. Afin de distinguer correctement les pics d'électrons de conversion interne de couche K des radionucléides, il est souhaitable d'avoir une résolution en énergie inférieure à 15 keV.
- Enfin, l'optimisation de l'absorption des électrons  $\beta^-$  émis par le  $^{133}\text{Xe}$  et la minimisation de l'absorption des photons K-X émis par les radionucléides contraignent l'épaisseur des détecteurs PIPS.

Les parois de la cellule sont constituées d'aluminium pur à bas bruit de fond radiologique et sont équipées de fenêtres de carbone de 600  $\mu\text{m}$  d'épaisseur. Ces fenêtres de carbone permettent de minimiser l'absorption des photons émis par le gaz radioactif (et détectés ensuite par un HPGe). Le volume de gaz total de la cellule est de 14,6 cm<sup>3</sup>. Le volume de gaz compris entre les deux détecteurs au silicium est 10,6 cm<sup>3</sup>. Deux volumes de gaz de 0,6 cm<sup>3</sup> chacun (compris entre les fenêtres de carbone et les détecteurs au silicium) relié au volume total interne de la PIPSbox protègent les détecteurs PIPS des variations de pression.

### 2.1.3 Le blindage du spectromètre GAMMA<sup>3</sup>

Les détecteurs ATHOS, PORTHOS et ARAMIS sont placés dans une chambre de mesure, de 50 litres de volume, située au cœur d'un blindage optimisé. Ce blindage est constitué de six couches concentriques détaillées ci-dessous de l'extérieur vers l'intérieur (voir la figure 2.3) :

1. La couche 1 est en acier, de 2 cm d'épaisseur.
2. La couche 2 est le système de veto cosmique. C'est un ensemble de six plaques EJ-200 (un plastique scintillant distribué par la société Scionix) de 5 cm d'épaisseur. Le plastique est protégé par une couche d'aluminium de 1,5 mm d'épaisseur. Les plaques sont équipées de photo-multiplicateurs (PM) ETL-9900B. Les signaux de mesure à la sortie de ces 6 PM sont étalonnés sur une même gamme d'énergie et sommés à l'aide d'un module électronique dédié afin de n'avoir qu'un seul signal de mesure correspondant au veto cosmique.
3. La couche 3 est une couche de plomb dit de *Faible Activité* (ou FA) de 4 cm d'épaisseur. Il est garanti comme ayant une radioactivité intrinsèque en  $^{210}\text{Pb}$  inférieure à 30 Bq( $^{210}\text{Pb}$ )/kg.



**Figure 2.3** – Photographie de la chambre de mesure (de 50 L de volume) du spectromètre GAMMA<sup>3</sup>. Les détecteurs au germanium ATHOS, PORTHOS et ARAMIS sont placés en configuration de mesure pour un échantillon de type SG500. Les différentes couches de blindage sont numérotées de 1 à 6.

4. La couche 4 est une couche de plomb dit de *Très Faible Activité* (ou TFA) de 8 cm d'épaisseur. Il est garanti comme ayant une radioactivité intrinsèque en  $^{210}\text{Pb}$  inférieure à 3 Bq( $^{210}\text{Pb}$ )/kg.
5. La couche 5 est une couche de polyéthylène boré (noté PE/B par la suite) à 2 % (en masse) de 5 cm d'épaisseur.
6. Enfin, la dernière couche (6) est une couche de plomb dit de *Très Très Faible Activité* (ou T2FA) de 3 cm d'épaisseur. Il est garanti comme ayant une radioactivité intrinsèque en  $^{210}\text{Pb}$  inférieure à 0,3 Bq( $^{210}\text{Pb}$ )/kg.

Par ailleurs, une injection d'azote sec dans la chambre de mesure est effectuée. Cela engendre une surpression qui permet de purger la cellule de mesure et de réduire l'interférence des descendants du radon avec la mesure, comme expliqué précédemment dans la section 4 du premier chapitre.

Au total, ce blindage pèse 6 tonnes. La couche 5 de PE/B de 5 cm d'épaisseur est intercalée entre la couche de plomb TFA et celle de plomb T2FA afin de : (i) diminuer les flux cosmiques secondaires et tertiaires de neutrons ; et (ii) permettre l'absorption (par la couche de plomb T2FA) des photons issus du PE/B (photons de 477 keV produits par la

capture des neutrons par le bore, ou photons de radioactivité naturelle provenant d'une possible contamination du PE/B).

La présence de 15 cm de plomb (pour l'épaisseur cumulée des couches 3, 4, et 6) garantit une atténuation de 99,8 % (calculé *via* le logiciel proposé par Hubbell et Seltzer (2004)) du flux environnemental de photons les plus énergétiques, correspondant aux photons à 2614,5 keV de l'émission  $\gamma$  du  $^{208}\text{Tl}$  (descendant du  $^{232}\text{Th}$ ).

Par ailleurs, vis-à-vis du flux de muons cosmique, le PE/B est un matériau très léger et n'a aucun effet. Ainsi le blindage a une épaisseur totale cumulée en matériaux denses de 15 cm. Ceci respecte les résultats de l'étude de Vojtyla et Povinec (2000), concernant l'interaction du flux de muons cosmiques avec le blindage.

Enfin, la couche de plomb T2FA absorbe 94 % du flux de photons de 477 keV (calculé *via* le logiciel proposé par Hubbell et Seltzer (2004)) et diminue le bruit de fond imputable au  $^{210}\text{Bi}$  dans la couche de plomb TFA d'un facteur 500 (cf. l'analyse de Vojtyla (1996b) dans la section 1.4.3). L'épaisseur de cette couche est limitée à 3 cm afin de minimiser la production de neutrons générés par le flux de muons cosmiques la traversant.

## 2.2 Le système d'acquisition numérique

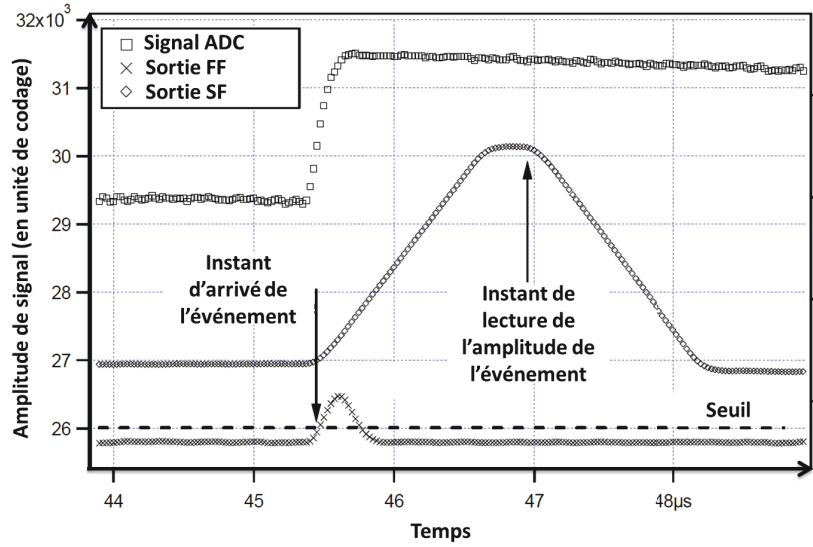
Les signaux issus des préamplificateurs de chacun des détecteurs sont enregistrés par des cartes d'acquisition multicanaux à quatre voies. Sur chacune des voies, une carte multicanal échantillonne le signal à une fréquence de 75 MHz (notée  $f_{ech}$ ) sur 14 bits. L'amplitude du pic est enregistrée avec une précision de 16 bits. Ces cartes sont des DGF Pixie-4<sup>TM</sup>, développées par la société XIA LLC.

### 2.2.1 Fonctionnement

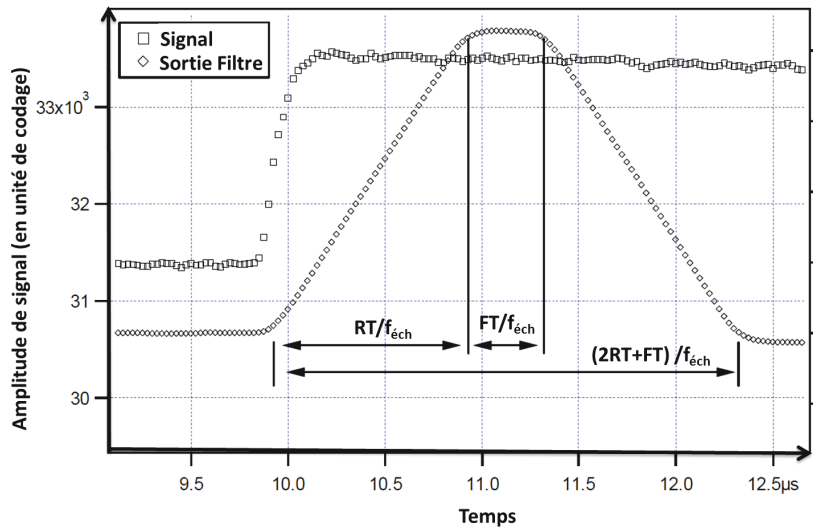
Les signaux en entrée de chacune des voies sont traitées numériquement afin d'en extraire les informations d'intérêts. Ce traitement du signal s'effectue *via* l'implémentation de deux filtres trapézoïdaux numériques fonctionnant en parallèle. Un filtre dit "rapide" permet de repérer dans le signal un événement d'intérêt, tandis qu'un filtre dit "lent" permet de récupérer l'amplitude (*i.e.* l'énergie) de cet événement. Le principe de fonctionnement de cet algorithme est illustré en figure 2.4.

Un filtre trapézoïdal numérique est caractérisé par deux grandeurs : son temps de montée (ou *Rise Time* noté  $RT/f_{ech}$ ) et son temps de palier (ou *Flat Top* noté  $FT/f_{ech}$ ). Le schéma de fonctionnement d'un filtre trapézoïdal est représenté en figure 2.5. La sortie  $F$  d'un tel filtre, calculée pour un point de signal  $S_N$  est donnée par :

$$F_{RT,FT}(S_N) = 1/A \left( \sum_{i=N-RT+1}^N S_i - \sum_{i=N-2RT-FT+1}^{N-RT-FT} S_i \right). \quad (2.1)$$



**Figure 2.4** – Schéma illustrant le fonctionnement d'une voie d'entrée d'une carte DGF Pixie-4<sup>TM</sup>. Le signal du préamplificateur (ADC) est représenté par des carrés (courbe en haut), le signal en sortie du filtre numérique "rapide" (FF) est représenté par des croix (courbe en bas) et le signal en sortie du filtre numérique "lent" (SF) est représenté par des losanges (courbe du milieu). Lorsque le signal en sortie du filtre rapide dépasse un certain seuil, le temps de l'événement est relevé. L'amplitude de l'événement est ensuite relevé à un instant précis en fonction des paramètres du filtre "lent". Ce schéma est inspiré du manuel d'utilisateur du Pixie-4<sup>TM</sup>.



**Figure 2.5** – Schéma illustrant le fonctionnement d'un filtre trapézoïdal de temps de montée  $RT/f_{éch}$  et de temps de palier  $FT/f_{éch}$ . Le filtre calcule la différence normalisée entre deux moyennes, calculées chacune pendant  $RT/f_{éch}$  et séparées de  $FT/f_{éch}$ . Ce calcul est détaillé dans l'équation 2.1. Ce schéma est inspiré du manuel d'utilisateur du Pixie-4<sup>TM</sup>.

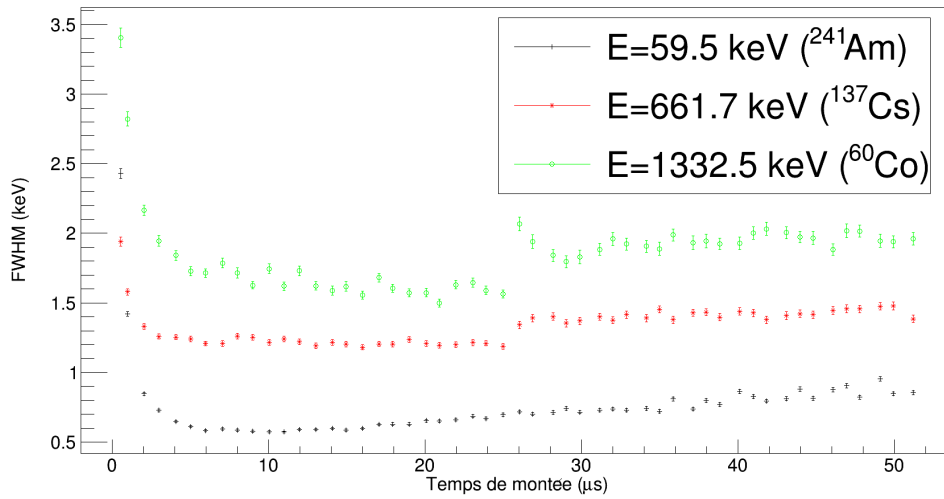
Ici, l'ensemble  $\{S_i\}_{i \in [1, N]}$  correspond aux  $N$  points de signal échantillonnés après  $S_N$ , et  $A$  est un facteur de normalisation. La condition suivante sur les  $RT$  et  $FT$  du filtre



trapézoïdal considéré doit être prise en compte :

$$N - 2RT - FT + 1 > 0 \quad (2.2)$$

La réponse du filtre au point suivant du signal numérisé est calculée sur un nouvel ensemble,  $\{S'_i\}_{i \in [1, N]}$  où  $S'_1$  correspond au nouveau point échantillonné, et où  $\forall i > 1, S'_i = S_{i-1}$ .



**Figure 2.6** – Courbes de réglage du temps de montée  $RT$  du filtre lent d'un détecteur HPGe. Ce paramètre permet de régler la résolution en énergie des pics. Afin de s'assurer que le réglage est correct sur toute la gamme énergétique de mesure, la résolution obtenue avec un réglage du temps de montée est donnée pour trois points d'énergie répartis sur l'ensemble de cette gamme.

Le filtre rapide permet de détecter un événement d'intérêt dans le signal en sortie du préamplificateur. En plus des temps de montée et de palier, un seuil est associé à ce filtre (comme illustré en figure 2.4). Le bon réglage de ce filtre permet de repérer tous les événements d'intérêt (en particulier les signaux de faible amplitude émis par le préamplificateur), et d'améliorer la résolution temporelle des événements. Le filtre lent permet de coder sur  $2^{16}$  canaux l'énergie d'un événement détecté. Le bon réglage de ce filtre permet d'optimiser la résolution en énergie des spectres produits, la forme gaussienne des pics présents sur ces spectres, et le temps mort (un  $RT$  élevé augmente le temps mort).

### 2.2.2 Réglages

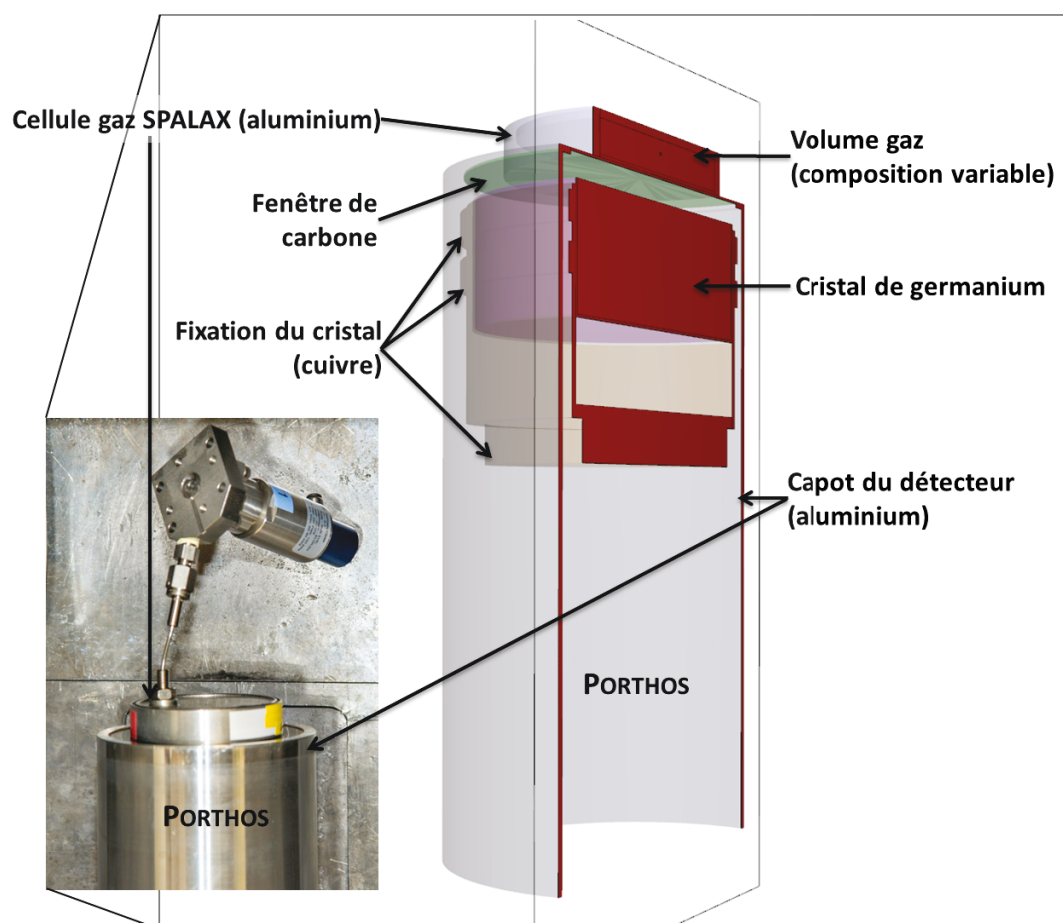
Les  $RT$  et  $FT$  des filtres lents et rapides de chacun des détecteurs sont réglés individuellement. Un exemple du réglage du temps de montée  $RT$  pour une voie dédiée à un détecteur HPGe est illustré en figure 2.6. Les grandeurs typiques de ces variables sont données dans le tableau 2.3.

Détecteur	Filtre "Rapide"		Filtre "Lent"	
	$RT$	$FT$	$RT$	$FT$
Germanium	$0,1 \mu s$	$0,08 \mu s$	$11 \mu s$	$1,17 \mu s$
Veto cosmique	$0,1 \mu s$	$0,08 \mu s$	$4,1 \mu s$	$0,4 \mu s$
Silicium	$0,84 \mu s$	0	$5,8 \mu s$	$0,3 \mu s$

**Tableau 2.3** – Grandeurs typiques des temps de montée ( $RT$ ) et de palier ( $FT$ ) des filtres "rapide" et "lent" des cartes DGF Pixie-4<sup>TM</sup> pour les détecteurs utilisés dans le spectromètre GAMMA<sup>3</sup>.

Le traitement des fichiers d'acquisition mode-listes s'effectue par l'intermédiaire d'applications c++ utilisant les bibliothèques du logiciel ROOT. À partir d'un fichier mode-liste, ces applications restituent les spectres de mesures directes et de coïncidences (ou anti-coïncidences) entre les différentes voies mises en œuvre lors d'une acquisition.

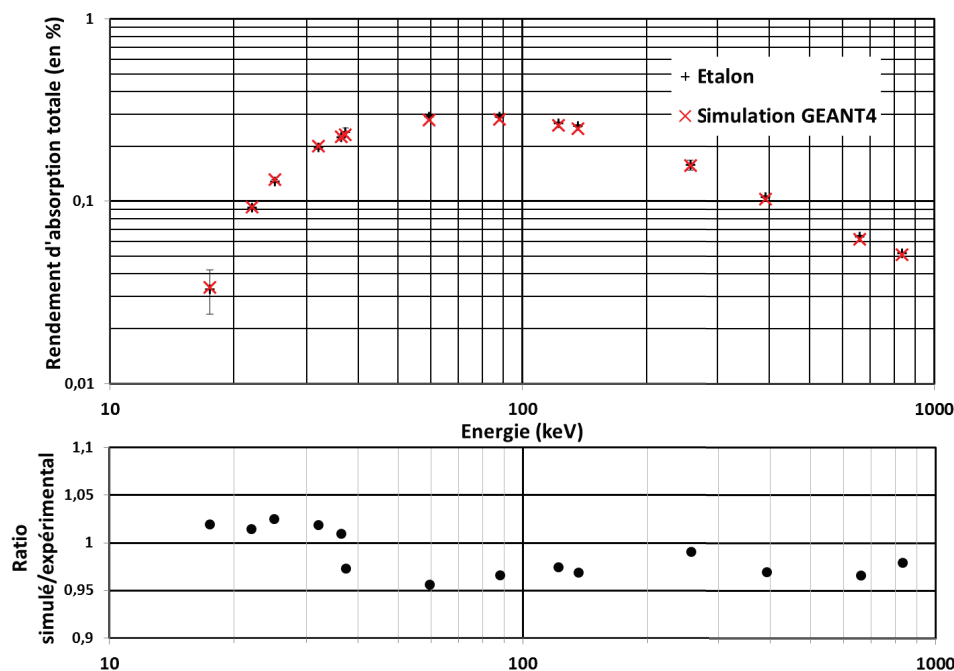
## 2.3 Rendements de détection des détecteurs HPGe



**Figure 2.7** – Photographie et schéma de simulation sous GEANT4 du détecteur PORTHOS pour la mesure d'une cellule gaz SPALAX. Les différents composants pris en compte par la simulation sont indiqués.

Les étalonnages en rendement des détecteurs ATHOS, PORTHOS et ARAMIS sont obtenus

nus par la mesure d'étalons et par des simulations Monte-Carlo. Le modèle de simulation s'appuie sur les radiographies et les données constructeurs de chacun des détecteurs. Ces modèles ont été ajustés sur un étalonnage en géométrie de la cellule de mesure gaz SPALAX de façon à ce que les rendements simulés correspondent aux rendements mesurés. Une telle configuration est illustrée en figure 2.7.



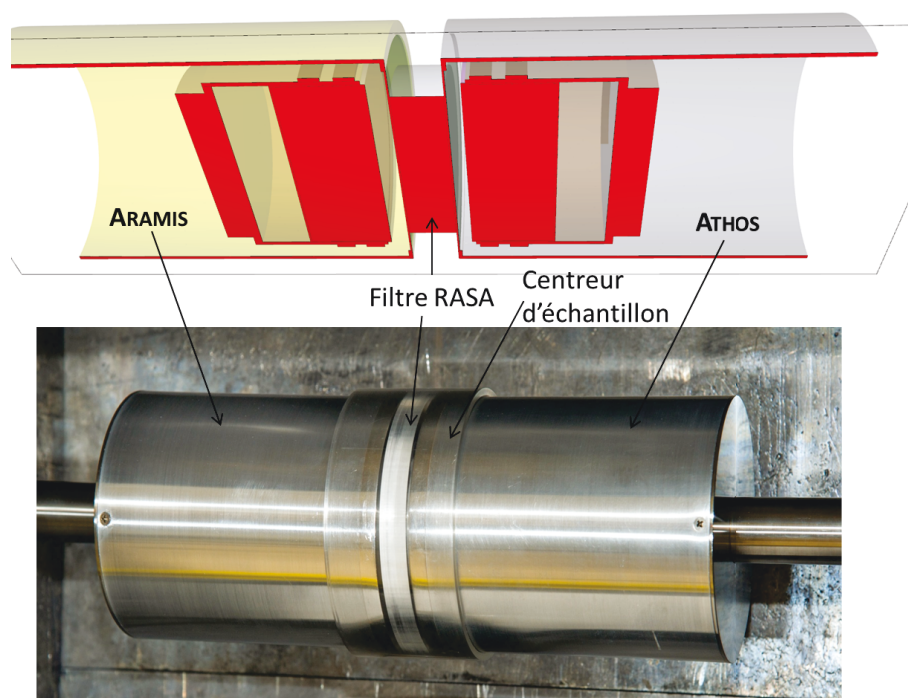
**Figure 2.8** – En haut : étalonnage (expérimental : + noir, et simulé : x rouge) en rendement d'absorption totale du détecteur PORTHOS en géométrie de mesure de cellule gaz SPALAX (cf. figure 2.7). En bas, les points noirs représente le ratio entre le rendement d'absorption totale simulé et expérimental correspondant. Le rendement d'absorption totale simulé est comparable à la mesure expérimentale car l'écart entre ces deux grandeurs est systématiquement inférieur à 5 % (et est en moyenne de l'ordre de 3 %).

Tel que cela a été expliqué dans la section 1.5.3, la cellule gaz SPALAX est l'outil de mesure des radioxénons mis en œuvre par le système de détection des stations Gaz Noble SPALAX. Les rendements d'absorption totale obtenus expérimentalement et par la simulation sont retranscrits dans la figure 2.8. On observe une très bonne similitude, avec un écart relatif moyen inférieur à 3 %. Au final, les paramètres de simulations sont synthétisés dans le tableau 2.4. Les grandeurs géométriques (dimensions du cristal, distances entre matériaux) permettant de calibrer les simulations Monte-Carlo ont été obtenues à partir des données constructeurs et des radiographies des détecteurs, tandis que les grandeurs physique (*i.e.* les volumes morts) ont été optimisées pour que les rendements simulés soient similaires aux étalonnages expérimentaux.

Les rendements de détection pour trois géométries de mesure sont donnés, chacune étant représentative d'une configuration de mesure particulière du spectromètre GAMMA<sup>3</sup>. Ces géométries sont :

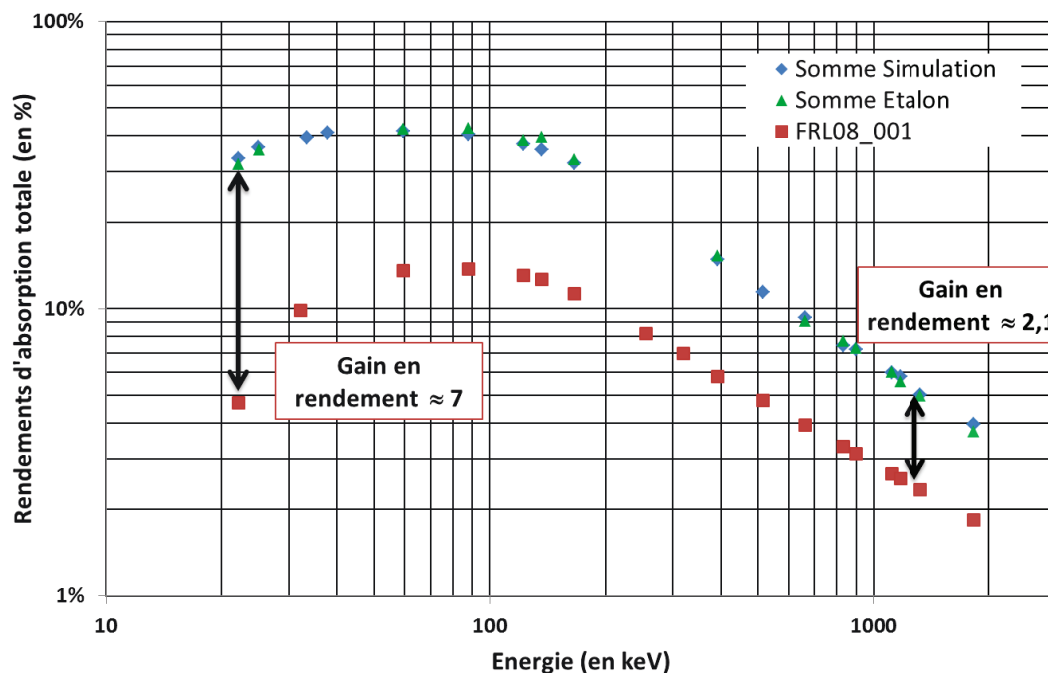
Paramètre	PORTHOS	ATHOS	ARAMIS
Épaisseur cristal* (en mm)	31,20	31,63	31,60
Diamètre cristal* (en mm)	81,0	81,0	80,9
Épaisseur des fenêtres* (en $\mu\text{m}$ )	500	500	500
Zone morte face avant** (en $\mu\text{m}$ )	5	5	5
Zone morte latérale** (en $\mu\text{m}$ )	800	1000	1000
Zone morte face arrière** (en $\mu\text{m}$ )	600	600	600
Distance fenêtre/cristal* (en mm)	6,31	5,69	7,46

**Tableau 2.4** – Paramètres optimisés clefs du modèle de simulation Monte-Carlo des détecteurs ATHOS, PORTHOS et ARAMIS. Les paramètres marqués \* sont obtenus à partir des données du constructeur ou de l'analyse des radiographies des détecteurs, ceux marqués \*\* sont optimisés à partir de la comparaison entre les étalonnages en rendement simulé et mesuré.



**Figure 2.9** – Schéma de simulation sous GEANT4 de la géométrie de mesure d'un filtre de prélèvement des particules atmosphériques RASA comprimé, placé entre ATHOS et ARAMIS.

- d'une part la géométrie classique pour la mesure des radionucléides (la cellule gaz SPALAX), cette géométrie de cellule gaz (figure 2.7) ne fait intervenir qu'un seul détecteur (dans ce cas il s'agit du détecteur PORTHOS).

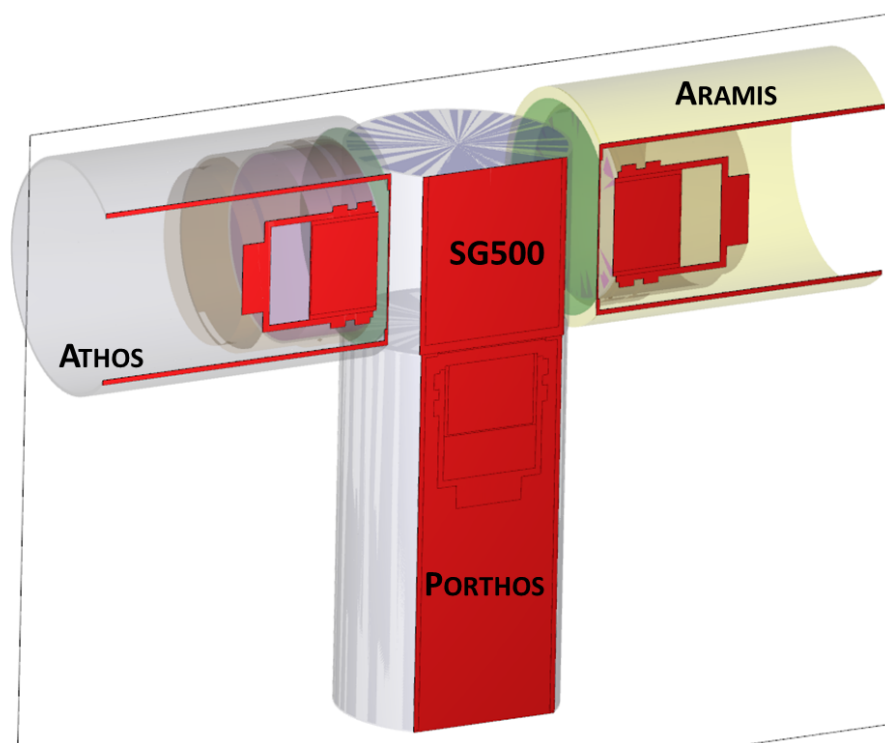


**Figure 2.10** – Courbes de rendement de détection simulé sous GEANT4 et mesuré en géométrie de mesure d'un filtre compressé de prélèvement des particules atmosphériques RASA placé entre ATHOS et ARAMIS. Le rendement Somme correspond à l'addition des spectres d'ATHOS et ARAMIS. À titre de comparaison, le rendement d'absorption totale pour la même géométrie obtenu avec le détecteur FRL08\_001 (détecteur HPGe de type N coaxial installé au laboratoire).

- D'autre part la mesure en géométrie de filtre RASA. Les filtres RASA sont des filtres de prélèvement atmosphérique. Sous sa forme compressé, il a un diamètre de 70 mm et une épaisseur de 18 mm. Dans ce cas, le filtre est placé entre ATHOS et ARAMIS(cf. figure 2.9) et les résultats des simulations sont donnés dans la figure 2.10.
- Enfin, la mesure en géométrie SG500. Le SG500 est un cylindre de 500 mL de volume. C'est la géométrie typique pour la mesure des échantillons volumineux ou des échantillons liquides de grand volume. Cette géométrie est mesurée par les trois détecteurs. Cette géométrie de mesure est illustrée par la figure 2.11. Le gain obtenu lors d'une mesure avec un ou trois détecteurs au germanium est illustré en figure 2.12 et les résultats de ces simulations sont donnés dans la figure 2.13.

L'utilisation de deux détecteurs permet donc de doubler le rendement d'absorption totale (cf. figure 2.10). Le spectromètre GAMMA<sup>3</sup> ainsi configuré a un rendement d'absorption totale supérieur à 30 % entre 20 et 200 keV (et même supérieur à 40 % entre 30 et 120 keV). En comparaison, le GC6020 de Canberra, un détecteur HPGe coaxial ayant une efficacité de 60 % (selon la norme ANSI/Std 325-1996) a un rendement d'absorption totale pour un filtre de 7 cm de diamètre ne dépassant pas les 10 % (à 150 keV). Ainsi, même si les géométries ne sont pas exactement les mêmes, l'utilisation de deux détecteurs BEGe5030 (tel que c'est le cas pour le spectromètre GAMMA<sup>3</sup>) apporte un gain appré-

ciable en terme de rendement de détection.

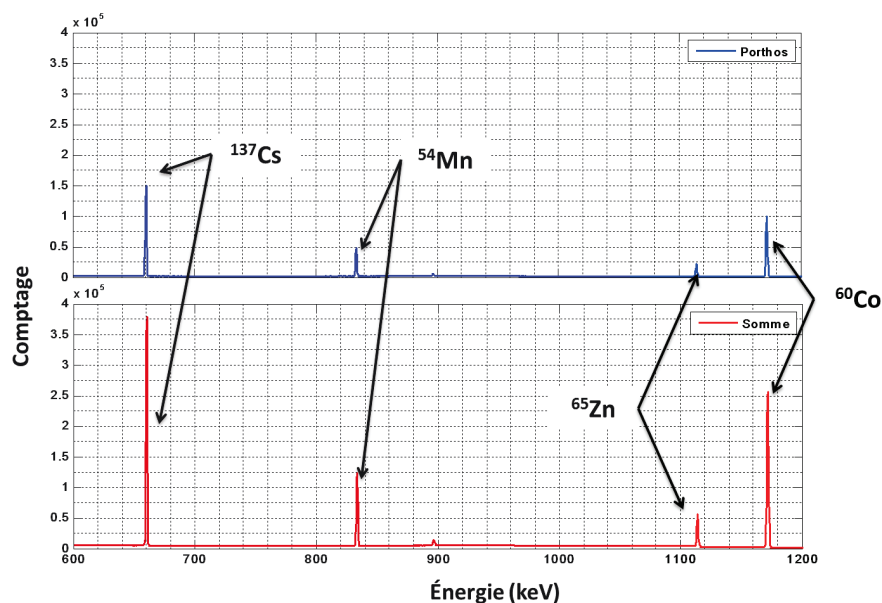


**Figure 2.11** – Schéma de simulation sous GEANT4 de la géométrie de mesure d'un volume SG500, placé entre ATHOS, PORTHOS et ARAMIS.

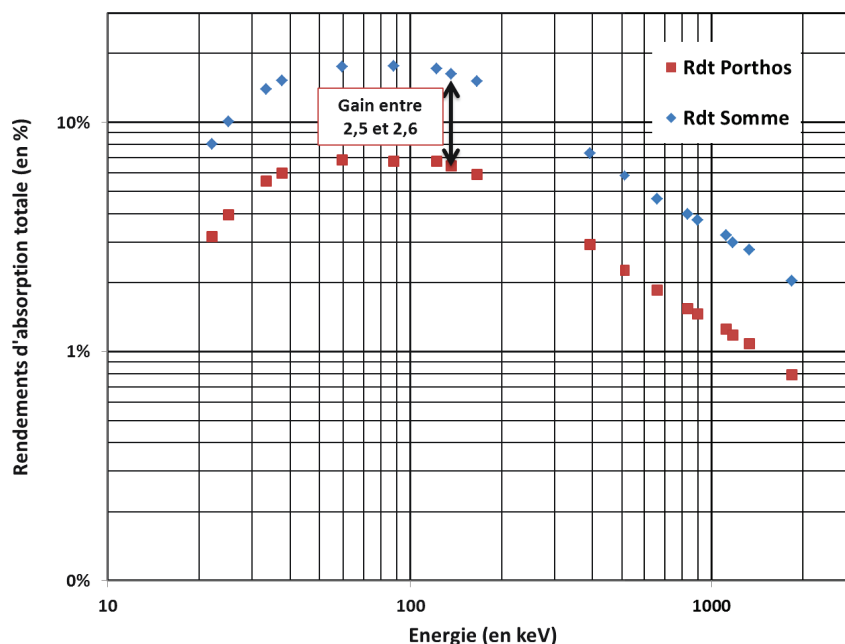
Par ailleurs, on s'aperçoit que pour la mesure d'une géométrie SG500, le rendement d'absorption totale est 2,5 à 2,6 fois supérieur lorsque la mesure est effectuée avec trois détecteurs au lieu d'un (cf. figure 2.13). Dans ce cas les détecteurs latéraux ATHOS et ARAMIS apportent chacun  $3/10^e$  du rendement de détection, tandis que le détecteur central PORTHOS en apporte  $4/10^e$  (du fait de la géométrie du SG500). Les gains de rendement constatés sont supérieurs aux estimations de Jutier et Douysset (2012). Le spectromètre GAMMA<sup>3</sup> présente donc un rendement de détection en géométrie SG500 particulièrement élevé (supérieur à 10 % entre 25 et 300 keV). Le gain (de 2,5 à 2,6 en rendement d'absorption total) apporté par une mesure à trois détecteurs germanium est illustré en figure 2.12.

Un gain supplémentaire pour les échantillons de large volume peut être obtenu en repensant la géométrie de ce type d'échantillons. Le rendement d'absorption totale d'une géométrie appelée LV835 (de 835 mL de volume contre 500 mL pour le SG500), a été simulé. Cette géométrie est présentée en figure 2.14. Dans ce cas, l'échantillon est un cube dont deux cotés ont la dimension du diamètre du capot des détecteurs ATHOS et ARAMIS, et un coté a la dimension du diamètre du capot du détecteur PORTHOS.

Les simulations Monte-Carlo des rendements d'absorption totale, illustrées en figure 2.15, montrent un gain entre 24 et 47 % (et un gain moyen de 33 %) du rendement d'absorption totale (normalisé par le volume d'échantillon) obtenu avec la géométrie LV835

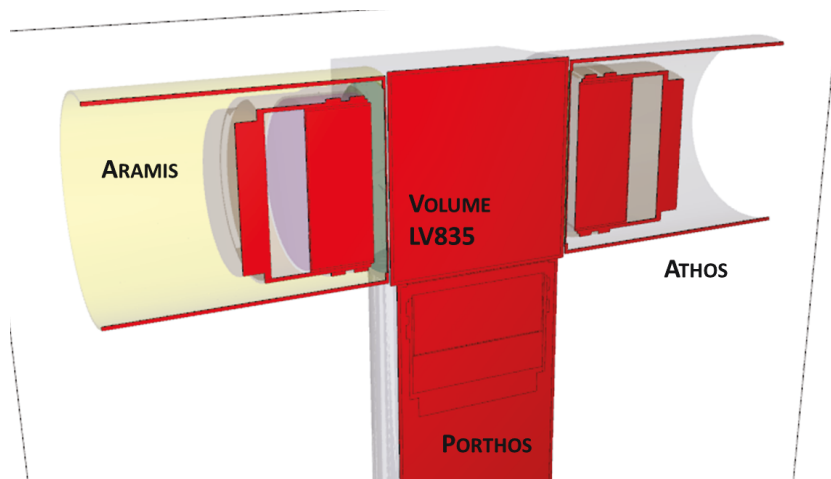


**Figure 2.12** – Illustration du gain de rendement apporté par l'utilisation de trois détecteurs au germanium au lieu d'un seul. La courbe en bleu est le spectre de mesure d'un standard de radioactivité en géométrie SG500 obtenu avec le détecteur PORTHOS, et la courbe rouge est le spectre de la même acquisition en sommant les spectres obtenus avec les détecteurs ATHOS, PORTHOS et ARAMIS.

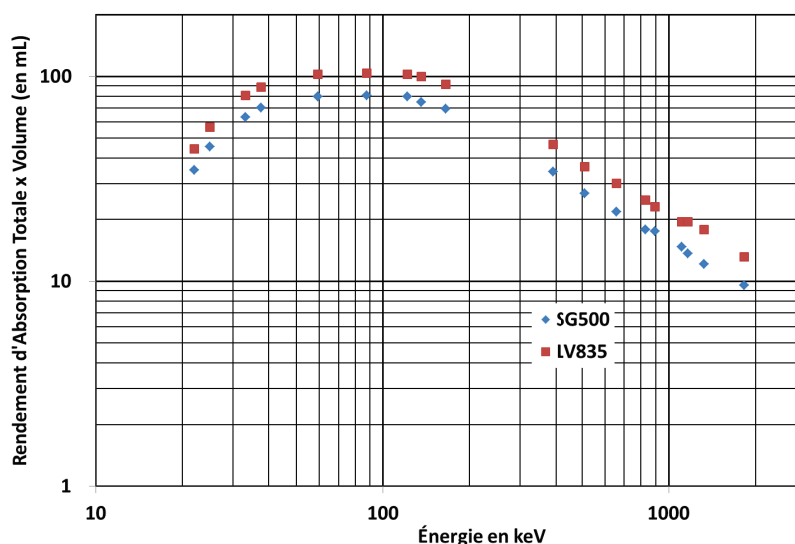


**Figure 2.13** – Courbe de rendement de détection simulé sous GEANT4 en géométrie de mesure d'un volume SG500 placé entre ATHOS, PORTHOS et ARAMIS. Le rendement Somme correspond à l'addition des spectres d'ATHOS, de PORTHOS et d'ARAMIS. Dans cette géométrie, l'utilisation de trois détecteurs HPGe permet de gagner un facteur 2,5 à 2,6 sur le rendement par rapport à une mesure à un seul détecteur.





**Figure 2.14** – Schéma de simulation sous GEANT4 de la géométrie de mesure d'un LV835, placé entre ATHOS, PORTHOS et ARAMIS. Le LV835 est une brique de 835mL de volume, adaptée précisément à une mesure à trois détecteurs telle que celle présentée sur la figure.



**Figure 2.15** – Simulation Monte-Carlo du rendement d'absorption totale lors de la mesure d'un LV835. À titre de comparaison, le rendement d'absorption totale en géométrie SG500 est aussi affiché sur le graphique. En ordonné, le rendement d'absorption totale est multiplié par le volume de la géométrie correspondante (835mL pour LV835 et 500 mL pour le SG500) afin de tenir compte du gain en volume apporté par l'utilisation d'une géométrie LV835.

comparé au rendement d'absorption totale obtenu avec la géométrie SG500. Cela signifie qu'à bruit de fond équivalent entre la géométrie SG500 et LV835 (puisque la mesure de ces deux géométries implique l'utilisation des trois détecteurs HPGe), la mesure en géométrie LV835 permet un gain moyen d'environ 33 % des activités minimales détectables volumiques par rapport à une mesure en géométrie SG500.

Toutefois, comme le montre l'équation 1.36, l'AMD d'un radionucléide dépend de son



rendement d'absorption totale et de sa  $L_D$  dans sa région d'intérêt de mesure. Ainsi, l'analyse de ses rendements de détection ne suffit pas à évaluer les performances de mesure d'un spectromètre à très bas bruit de fond. L'étude des pics et du comptage intégral du bruit de fond est nécessaire.

## 2.4 Étude du bruit de fond

L'étude du bruit de fond s'effectue en deux temps. On s'intéressera d'abord au comptage intégral de ce bruit de fond, et ensuite aux pics caractéristiques de celui-ci.

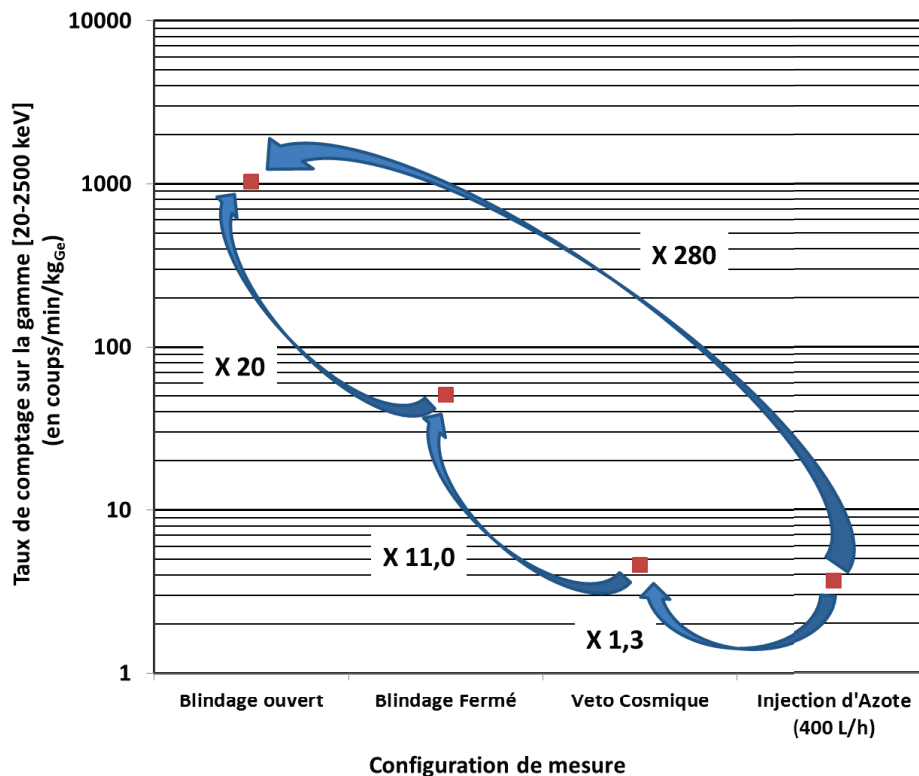
Le comptage intégral et les pics de bruit de fond du spectromètre GAMMA<sup>3</sup> sont comparés (en moyenne ou détecteur par détecteur) à deux spectromètres à bas bruit de fond du laboratoire FRL08 du CEA/DAM. Le laboratoire FRL08 est le laboratoire certifié par l'OTICE pour la re-mesure et l'expertise des échantillons produits par les stations particules du Système de Surveillance International (SSI) du TICE.

- le spectromètre FRL08\_001 est équipé d'un détecteur HPGe de type N coaxial et dont le cristal de germanium a un volume de 250 cm<sup>3</sup>. Ce spectromètre est équipé d'un veto cosmique, d'un blindage de plomb de 15 cm d'épaisseur et d'une électronique analogique. Son efficacité relative (au sens de l'ANSI/Std 325-1196) est de 59 %.
- le spectromètre FRL08\_004 est équipé d'un détecteur HPGe de type P coaxial et dont le cristal de germanium a un volume de 186 cm<sup>3</sup>. Ce spectromètre est équipé d'un veto cosmique, d'un blindage de plomb de 15 cm d'épaisseur et d'une électronique analogique. Son efficacité relative (au sens de l'ANSI/Std 325-1196) est de 53 %.

### 2.4.1 Étude du comptage intégral

Le bruit de fond intégral est le comptage total sur une certaine gamme d'énergie lors d'une mesure de bruit de fond.

Afin d'illustrer le gain apporté par différents éléments du blindage, l'évolution du bruit de fond intégral normalisé à la masse des cristaux de germanium du spectromètre GAMMA<sup>3</sup> dans différentes configurations de blindage est représenté en figure 2.16. Ainsi, on observe que le bruit de fond intégral est diminué d'un facteur 280 entre une mesure dans le blindage ouvert et une mesure en conditions optimales (blindage fermé, avec veto cosmique et injection d'azote à 400 L/h). La figure 2.16 montre aussi que, en château fermé, l'utilisation du veto cosmique permet de réduire le bruit de fond intégral normalisé d'un facteur 11. Ce facteur de réduction du bruit de fond est meilleur que ceux publiés par Schroettner *et al.* (2004), Povinec *et al.* (2004) ou encore Burnett et Davies (2012). Enfin, l'utilisation combinée des deux techniques de blindage actif (le veto cosmique et l'injection d'azote à 400 L/h) en condition optimale permet de réduire le bruit de fond intégral normalisé d'un



**Figure 2.16** – Évolution du taux de comptage intégral normalisé (par la masse de germanium) du bruit de fond sur la gamme [20-2500 keV] en fonction du blindage mis en œuvre.

facteur 13,9.

Le bruit de fond intégral du spectromètre sur différentes plages d'énergie est donné dans le tableau 2.5. À titre de comparaison, les bruits de fond intégraux de deux autres spectromètres du laboratoire sont aussi fournis dans ce tableau. On note ainsi que sur chacune des plages d'énergie considérées, le bruit de fond intégral du spectromètre GAMMA<sup>3</sup> est deux fois plus faible que ceux des deux autres spectromètres.

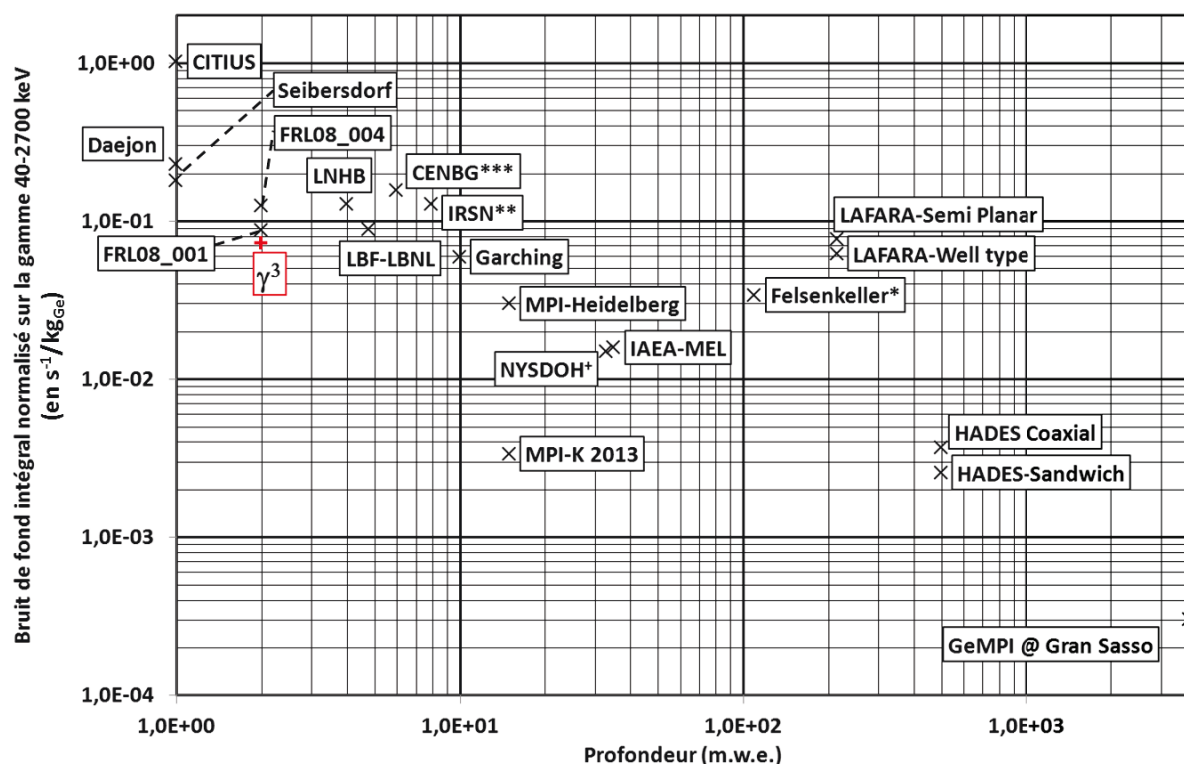
Le bruit de fond intégral sur la gamme 40-2700 keV, normalisé par la masse du cristal de germanium du spectromètre est comparé en figure 2.17 avec ceux de la communauté scientifique. L'éventail de spectromètres étudiés dans cette figure est très large, puisque sont représentés des spectromètres installés en laboratoire de surface (de 1 à 10 m.w.e.), en laboratoire de faible profondeur (de 10 à 100 m.w.e.), et en laboratoire profond (profondeur supérieure à 100 m.w.e.). Le spectromètre GAMMA<sup>3</sup> a le bruit de fond intégral normalisé sur la gamme énergétique de 40 à 2700 keV le plus bas des spectromètres en laboratoire de surface.

## 2.4.2 Pics caractéristiques du bruit de fond

La liste des pics résiduels du bruit de fond est donnée dans le tableau 2.6. Ce tableau permet d'estimer le gain apporté par les différents composants du blindage. L'étude de l'effet de la couche de PE/B et de l'injection d'azote sera abordée plus loin. Il s'agit ici

Caractéristique		Taux de comptage intégral du bruit de fond (en $\text{min}^{-1}$ )					
		ATHOS	PORTHOS	ARAMIS	Moyenne	FRL08_001	FRL08_004
Gamme d'énergie (keV)	20 - 2500	3,08	3,38	2,96	3,14	8,6	7,9
	40 - 2500	2,96	3,19	2,79	2,98	6,9	7,4
	100 - 400	1,12	1,21	1,04	1,12	2,2	2,9
	400 - 1400	1,18	1,26	1,10	1,18	2,6	2,8
	1400 - 2500	0,22	0,26	0,24	0,24	0,9	0,8
Type		5030P BEGe	5030P BEGe	5030P BEGe		250 $\text{cm}^3$ n-type HPGe	186 $\text{cm}^3$ p-type HPGe
Masse de germanium (kg)		0,87	0,85	0,86		1,3	0,99

**Tableau 2.5** – Comparaison des taux de comptage normalisés de bruit de fond des détecteurs du spectromètre GAMMA<sup>3</sup> (avec injection d'azote à 400 L/h) avec ceux de deux spectromètres du laboratoire : FL08\_001 (détecteur HPGe coaxial de type N, cristal de 250  $\text{cm}^3$ ) et FRL08\_004 (détecteur HPGe coaxial de type P, cristal de 186  $\text{cm}^3$ ).



**Figure 2.17** – Comparaison des bruits de fond de différents spectromètres au germanium (spécialisés dans les mesures de traces de radioactivité) en fonction de la profondeur du laboratoire. \* : le laboratoire Felsenkeller n'utilise pas de veto cosmique. \*\* : le bruit de fond intégral de l'IRSN est calculé sur la gamme de 30 à 1600 keV. \*\*\* : le bruit de fond intégral du CENBG est calculé sur la gamme de 30 à 3000 keV. Ces taux de comptage normalisés sont tirés de : Hult *et al.* (2000), Schwaiger *et al.* (2002), Hurtado *et al.* (2006), Povinec *et al.* (2004), Povinec *et al.* (2008b), Wieslander *et al.* (2009), Koehler *et al.* (2009), Ferreux *et al.* (2009), Haines *et al.* (2011), de Vismes Ott *et al.* (2012), Perrot *et al.* (2012), Hofmann *et al.* (2013), Thomas *et al.* (2013), van Beek *et al.* (2013), et Heusser *et al.* (2013).

Éléments de bruit de fond		Taux de comptage (en h <sup>-1</sup> )				
Énergie photon (en keV)	Origine	Porthos	Athos	Aramis	FRL08_001	FRL08_004
23,4	<sup>71m</sup> Ge	0,42	0,49	0,55	4,7 [9,6]	0,47 [1,0]
46,5	<sup>210</sup> Pb	0,30	0,29	0,26	0,47 [1,6]	0,18 [0,7]
53,2 – 53,4	<sup>214</sup> Pb, <sup>73m</sup> Ge	0,33	0,24	0,29	1,53 [5,4]	0,56 [2,0]
63,3	<sup>234</sup> Th	0,16	0,32	0,12	-	-
66,7	<sup>73m</sup> Ge	0,60	0,65	0,80	6,99 [10]	4,37 [6,3]
72,9	Pb K-X	0,44	0,34	0,28	2,06 [5,9]	0,16 [0,4]
75,0	Pb X-rays, <sup>214,212</sup> Pb	1,34	1,38	1,35	5,66 [4,2]	0,83 [0,6]
77,1	<sup>214,212</sup> Pb	1,17	1,06	0,79	3,40 [3,4]	0,76 [0,8]
84,9	Pb K-X	0,27	0,34	0,52	1,91 [5,0]	0,41 [1,1]
87,6	Pb K-X	0,50	0,67	0,38	0,82 [1,6]	0,31 [0,6]
92,6	<sup>234</sup> Th	0,62	0,68	0,38	0,22 [0,4]	-
139,7	<sup>75m</sup> Ge	0,78	0,92	0,87	4,37 [5,0]	2,96 [3,4]
143,8	<sup>235</sup> U	0,14	0,19	0,16	-	0,12 [0,7]
159,7	<sup>77m</sup> Ge	0,22	0,13	0,20	0,20 [1,1]	0,84 [4,5]
175,0	<sup>71m</sup> Ge	0,27	0,10	0,17	0,73 [4,0]	0,45 [2,6]
185,7 – 186,2	<sup>235</sup> U – <sup>226</sup> Ra	0,37	0,42	0,33	-	0,43 [1,2]
198,3	<sup>71m</sup> Ge	1,18	1,27	1,09	4,86 [4,2]	2,71 [2,3]
238,6	<sup>212</sup> Pb	0,51	0,39	0,41	0,49 [1,2]	0,55 [1,3]
241,9	<sup>214</sup> Pb	0,69	0,49	0,43	1,85 [3,4]	0,94 [1,7]
277,4	<sup>208</sup> Tl	0,16	0,18	0,18	-	0,81 [4,8]
295,2	<sup>214</sup> Pb	1,42	1,27	0,97	3,75 [2,9]	1,69 [1,4]
351,9	<sup>214</sup> Pb	2,45	2,00	1,85	6,61 [3,1]	3,30 [1,6]
511	Annih.	2,85	2,52	2,44	5,76 [2,2]	5,63 [2,2]
537,4	<sup>206*</sup> Pb	0,13	0,09	-	0,16 [2,2]	0,12 [1,6]
569,7	<sup>207*</sup> Pb	0,16	0,20	0,26	0,34 [1,6]	0,64 [3,1]
583,2	<sup>208</sup> Tl	0,21	0,19	0,25	0,17 [0,8]	0,33 [1,5]
609,3	<sup>214</sup> Bi	1,78	1,36	1,37	5,41 [3,6]	2,81 [1,9]
768,4	<sup>214</sup> Bi	0,17	0,12	-	0,45 [4,7]	0,12 [1,2]
803,3	<sup>206*</sup> Pb	0,21	0,27	0,26	0,38 [1,6]	0,51 [2,1]
911,1	<sup>228</sup> Ac	0,13	0,19	0,12	-	-
934,1	<sup>214</sup> Bi	0,15	0,10	-	0,25 [3,0]	0,09 [1,1]
1120,3	<sup>214</sup> Bi	0,39	0,27	0,27	1,06 [3,4]	0,52 [1,7]
1173,2	<sup>60</sup> Co	0,13	0,10	0,09	-	-
1238,1	<sup>214</sup> Bi	0,15	0,08	0,08	0,50 [4,8]	0,29 [2,8]
1332,5	<sup>60</sup> Co	0,19	0,10	0,08	-	0,10 [0,9]
1460,8	<sup>40</sup> K	0,70	0,78	0,59	0,47 [0,7]	0,25 [0,4]
1764,5	<sup>214</sup> Bi	0,30	0,27	0,20	0,83 [3,2]	0,44 [1,7]

**Tableau 2.6** – Taux de comptage des raies X et  $\gamma$  caractéristiques du bruit de fond des détecteurs au germanium du spectromètre GAMMA<sup>3</sup>. À titre de comparaison, les taux de comptage des mêmes pics dans les bruits de fond des détecteurs FRL08\_001 et FRL08\_004 sont donnés. Les ratios entre la moyenne des taux de comptage relevés dans les détecteurs ATHOS, PORTHOS et ARAMIS (avec injection d'azote évaporé depuis le Dewar) et ceux relevés dans le bruit de fond des détecteurs de FRL08\_001 ou FRL08\_004 sont donnés entre crochets.

d'étudier le pic d'annihilation à 511 keV et les pics du  $^{40}\text{K}$ , du  $^{60}\text{Co}$ , du  $^{234}\text{Th}$  et du  $^{210}\text{Pb}$ .

Le pic d'annihilation (511 keV) est au moins deux fois plus faible dans le bruit de fond des détecteurs du spectromètre GAMMA<sup>3</sup> que dans ceux des spectromètres FRL08\_001 et FRL08\_004. Ce pic a plusieurs origines possibles, mais dans le cas précis d'une mesure de bruit de fond, il est essentiellement observé lors du passage des muons dans le spectromètre. Cela peut justifier que le veto cosmique du spectromètre GAMMA<sup>3</sup> est plus efficacement configuré que celui des deux autres spectromètres cités, principalement parce que pour ce spectromètre : (i) les plaques scintillantes du veto cosmique ont un meilleur rendement de détection des muons (facteur géométrique), et (ii) la mise en œuvre d'un veto cosmique numérique est plus précise qu'une mise en œuvre analogique (telle qu'effectuée pour les deux autres spectromètres). Cette réduction permet notamment une meilleure détectabilité du  $^{85}\text{Kr}$  (émetteur  $\gamma$  à 514,0 keV) et des émetteurs  $\beta^+$  (tels que le  $^{22}\text{Na}$  et le  $^{26}\text{Al}$ ).

Malgré l'utilisation de composants à bas bruit de fond radiologique, on observe des traces caractéristiques de  $^{40}\text{K}$ , de  $^{60}\text{Co}$ , de  $^{234}\text{Th}$ , de  $^{210}\text{Pb}$  et de  $^{235}\text{U}$  dans le bruit de fond des détecteurs. Ces isotopes sont des radionucléides primordiaux ou anthropogéniques et peuvent être présents dans les matériaux constituant le détecteur ou le blindage. En revanche, les taux de comptage relevés dans le tableau 2.6 sont inférieurs d'au moins un ordre de grandeur aux taux de comptage caractéristiques de ces radionucléides dans le bruit de fond d'un détecteur au germanium standard (comme donné dans le tableau 1.3). Cela signifie que ces radionucléides ne sont présents qu'à l'état de traces dans l'environnement des détecteurs ATHOS, PORTHOS et ARAMIS.

L'origine de ces traces peut être multiple. Le  $^{40}\text{K}$  peut provenir des fenêtres d'entrée des détecteurs (cf. Povinec *et al.* (2008a)) et de la couche de polyéthylène boré du blindage (cf. Heusser *et al.* (2013)). Quant au  $^{60}\text{Co}$ , c'est un contaminant connu de l'acier. La structure du spectromètre et le système de refroidissement cryogénique (appelé cryostat) des détecteurs est en acier, ce qui peut expliquer la présence de ces traces détectées dans le bruit de fond. De plus le  $^{234}\text{Th}$  et le  $^{210}\text{Pb}$  sont des descendants de l' $^{238}\text{U}$ . Ces traces, avec celles de l' $^{235}\text{U}$ , peuvent provenir des fenêtres d'entrée des détecteurs. Enfin, le  $^{210}\text{Pb}$  peut aussi venir de la couche de plomb T2FA entourant les détecteurs.

Afin de vérifier ces hypothèses, deux mesures des composants de ces fenêtres en fibres de carbone ont été effectuées. La première mesure a été celle d'un lot de 4 fenêtres en fibres de carbone placées sur le capot de PORTHOS (pendant  $4,3 \cdot 10^5$  s). La seconde mesure a été celle d'un lot de 12 tubes de résines époxy et durcisseurs répartis à la surface du capot du détecteur PORTHOS (pendant  $3,5 \cdot 10^5$  s). C'est le mélange de cette résine et du durcisseur qui permet de fixer les fenêtres en fibres de carbone sur le capot en aluminium des détecteurs. Ces mesures ont permis d'illustrer l'augmentation du comptage dans les *ROI* attribuées au  $^{40}\text{K}$  lors de la mesure des fenêtres en fibre de carbone et aux  $^{235}\text{U}$ ,  $^{234}\text{Th}$  et  $^{210}\text{Pb}$  lors de la mesure des tubes de durcisseurs et de résines. En revanche, la géométrie d'échantillon de ces mesures ne permet pas d'analyse quantitative de ces radionucléides.

Afin d'estimer correctement la radioactivité de ces composants (fenêtre de carbone, durcisseur et résine), ils ont été chacun mesurés au Laboratoire Souterrain de Modane (LSM). Le LSM est situé à environ 4800 m.w.e. de profondeur (dans le tunnel de Fréjus entre la France et l'Italie), et les spectromètres qui y sont installés ont les bruits de fond de mesure parmi les plus bas au monde (cf tableau 1.9). Certains d'entre eux sont spécialement utilisés pour la mesure des traces de radioactivité dans certains composants des grandes expériences de physique.

Chaque échantillon collecté a été mesuré pendant une semaine. Le détecteur utilisé pour ces mesures est un HPGe coaxial de type N. Le cristal a un rayon de 32,5 mm et une longueur de 63 mm, pour un volume utile total de 205 cm<sup>3</sup>. Il est équipé d'une fenêtre d'entrée en aluminium ultra-pur de 1,2 mm d'épaisseur. Cette fenêtre d'entrée a donc l'avantage de ne contenir aucune trace de radioactivité. En revanche elle a un taux d'absorption plus élevé que les fenêtres en fibre de carbone pour le flux de photons de basse énergie. En particulier, le rendement d'absorption totale de ce détecteur HPGe pour les photons de 46,5 keV émis par le <sup>210</sup>Pb est donc moins élevé que celui de PORTHOS. Ce détecteur est installé dans un blindage constitué d'une première couche intérieure de cuivre ultra-pur de 5 cm d'épaisseur et d'une seconde couche extérieure de plomb de 15 cm d'épaisseur. Le blindage de ce détecteur et sa localisation (4800 m.w.e.) lui confèrent un très bas bruit de fond de mesure. Son comptage intégral normalisé à la masse de germanium sur la gamme 40-2500 keV est de  $6,3 \cdot 10^{-3} \text{ s}^{-1}/\text{kg}_{\text{Ge}}$ , ce qui est près de 12 fois plus faible que celui du détecteur PORTHOS.

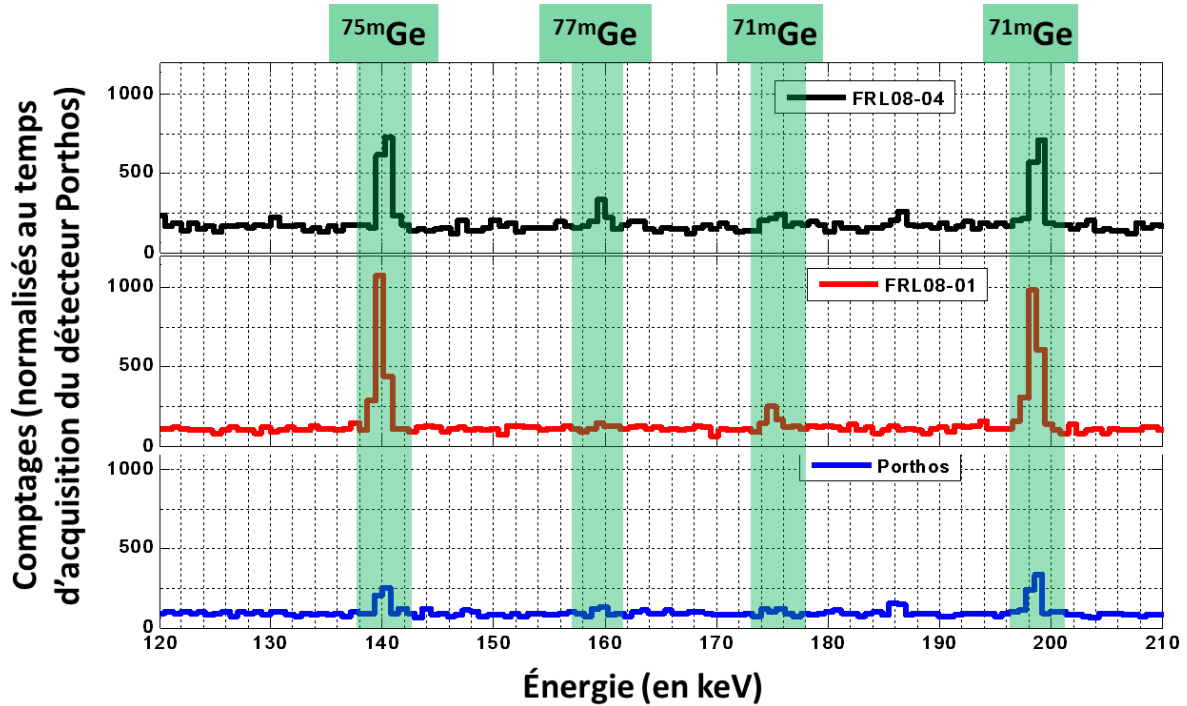
Élément	Énergie	Bruit de fond	Fenêtre	Durcisseur	Résine Epoxy
Comptage Intégral	40 - 2500 keV	3296	3402	3171	4048
Activité massique (mBq/g)	<sup>40</sup> K	1460,9 keV	–	2,3	$< L_D$
	<sup>235</sup> U	185,7 keV	–	$< L_D$	$< L_D$
	<sup>234</sup> Th	92,6 keV	–	1,0	3,3

**Tableau 2.7** – Résultats des mesures effectuées au LSM pour la quantification des impuretés radioactives dans les composants des fenêtres en fibre de carbone. Chacune des mesures a duré une semaine. Ces impuretés radioactives sont données en mBq/g. Les incertitudes liées à ces résultats sont imposées à 20 % du fait de l'étalonnage par simulation Monte-Carlo des rendements d'absorption totale du détecteur (sans radiographie de celui-ci et sans l'utilisation de source radioactive).

Les résultats de ces mesures sont synthétisés dans le tableau 2.7. Les rendements d'absorption totale de ce détecteur aux énergies d'émission de photons  $\gamma$  du <sup>40</sup>K, de <sup>235</sup>U, du <sup>234</sup>Th et du <sup>210</sup>Pb ont été simulés avec GEANT4. Cela confirme la présence de <sup>234</sup>Th (descendant direct du <sup>238</sup>U) dans le durcisseur et la résine époxy utilisés pour fixer les fenêtres en fibre de carbone sur le capot des détecteurs HPGe. Cela peut s'expliquer par la teneur en aluminium de la résine époxy ("Armstrong A-12", quelques dizaine de pourcent d'alumine). Ces mesures indiquent aussi la présence de traces de <sup>235</sup>U dans la résine époxy. Enfin, des traces de <sup>40</sup>K et de <sup>234</sup>Th (mais à un plus bas niveau que pour la résine

ou le durcisseur) sont mesurées dans les fenêtres en fibre de carbone.

### 2.4.3 Interactions avec les neutrons



**Figure 2.18** – Illustration de l'effet d'une couche de blindage de polyéthylène boré (PE/B) sur les pics d'absorption neutronique par les noyaux de germanium. Les trois spectres présentés sont normalisés au temps d'acquisition de la mesure effectuée sur le détecteur PORTHOS (ici  $1,7 \cdot 10^6$  s). Les blindages des détecteurs FRL08\_001 et FRL08\_004 ne sont pas équipés de couche de PE/B, contrairement au détecteur PORTHOS.

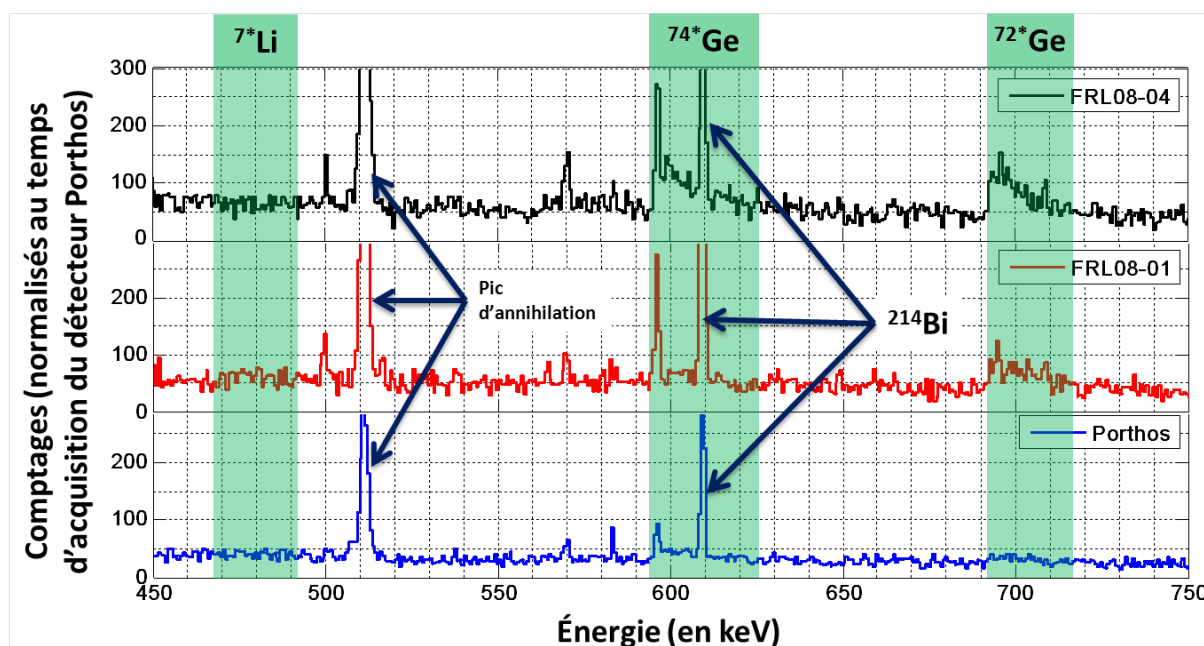
Les phénomènes d'interactions (capture, diffusion élastique ou inélastique) des neutrons lents et rapides avec le germanium ont été présentés dans le chapitre 1, et les pics caractéristiques de ces interactions sont relevés dans le tableau 1.6. Les figures 2.18 et 2.19 illustrent le gain apporté par la couche de PE/B pour la réduction des pics attribuables à l'interaction des neutrons avec le germanium. Contrairement au détecteur PORTHOS, les blindages des détecteurs FRL08\_001 et FRL08\_004 ne comprennent pas de couche de PE/B. Les pics consécutifs de l'interaction des neutrons avec le cristal de germanium sont plus importants pour FRL08\_001 que pour FRL08\_004 car son cristal a un plus grand volume ( $250 \text{ cm}^3$  pour FRL08\_001 contre  $186 \text{ cm}^3$  pour FRL08\_004).

La figure 2.18 s'intéresse à la région entre 120 et 210 keV des spectres de bruit de fond des détecteurs HPGe, où 4 pics d'activation neutronique du germanium sont repérables. Le pic à 139,7 keV du  $^{75}\text{mGe}$  interfère avec celui à 140,5 keV du  $^{99\text{m}}\text{Tc}$ , ce qui diminue la sensibilité d'un détecteur HPGe pour ce radionucléide. Grâce à la couche de PE/B, l'aire du pic de  $^{75}\text{mGe}$  dans le bruit de fond de PORTHOS est respectivement 5 et 3,4 fois plus faible que dans les bruits de fond des détecteurs de FRL08\_001 et de FRL08\_004, ce qui

améliore nettement la limite de détection du spectromètre à l'énergie caractéristique du  $^{99m}\text{Tc}$ .

En dehors des zones d'énergie illustrées par les figure 2.18 et 2.19, on notera en particulier que (cf. tableau 2.6) :

- à plus basse énergie, la détectabilité du  $^{234}\text{Th}$  (descendant direct de l' $^{238}\text{U}$ ) est améliorée par la réduction du pic d'activation du germanium à 66,7 keV ( $^{73m}\text{Ge}$ ).
- La détectabilité du  $^{140}\text{Ba}$  est améliorée par la diminution du pic à 537,4 keV de diffusion inélastique des neutrons sur le  $^{206}\text{Pb}$ .



**Figure 2.19** – Illustration de l'effet d'une couche de blindage de polyéthylène boré (PE/B) sur les pics de diffusion inélastique des neutrons sur les noyaux de germanium. Les trois spectres présentés sont normalisés au temps d'acquisition de la mesure effectuée sur le détecteur PORTHOS. Les blindages des détecteurs FRL08\_004 et FRL08\_001 ne sont pas équipés de couche de PE/B, contrairement au détecteur PORTHOS. À titre d'information, le pic d'émission  $\gamma$  principal du  $^{214}\text{Bi}$  à 609,3 keV, le pic d'annihilation à 511 keV et la ROI de l'émission à 477 keV de dé-excitation du  $^{7*}\text{Li}$  (suite à la capture de neutron par le  $^{10}\text{B}$ ) sont indiqués sur chacun des spectres. On remarque que le spectre du détecteur PORTHOS ne présente pas de comptage particulier dans la ROI du  $^{7*}\text{Li}$ .

La figure 2.19 illustre la zone entre 450 et 750 keV des spectres de bruit de fond des détecteurs HPGe. Dans cette région, deux pics de diffusion inélastique des neutrons sur les noyaux des isotopes 74 (à 595,8 keV) et 72 (à 693 keV) du germanium sont observés. Ces pics, à forme triangulaire, ont clairement une amplitude plus faible dans le bruit de fond de PORTHOS que dans celui du détecteur de FRL08\_001 ou de FRL08\_004. Cela permet l'amélioration de la limite de détection d'un certain nombre de radionucléides



d'intérêt pour le TICE (cf. De Geer (2001)), parmi lesquels : le  $^{134}\text{Cs}$  (604,7 keV), les  $^{124,125,126}\text{Sb}$  (respectivement 602,7 keV, 600,6 keV et 695,0 keV), le  $^{108m}\text{Ag}$  (614,3 keV), le  $^{129m}\text{Te}$  (695,9 keV), les  $^{106}\text{Ru/Rh}$  (621,9 keV) et le  $^{74}\text{As}$  (595,8 keV). Sur cette figure, on observe aussi la réduction du pic d'annihilation à 511 keV (cf. la section 2.4.2 précédente). Enfin, aucun pic d'émission suite à la capture des neutrons par le  $^{10}\text{B}$  n'est observé à 477 keV. Ceci souligne que la couche de plomb T2FA a une épaisseur adéquate.

#### 2.4.4 Interférences liées aux descendants du radon

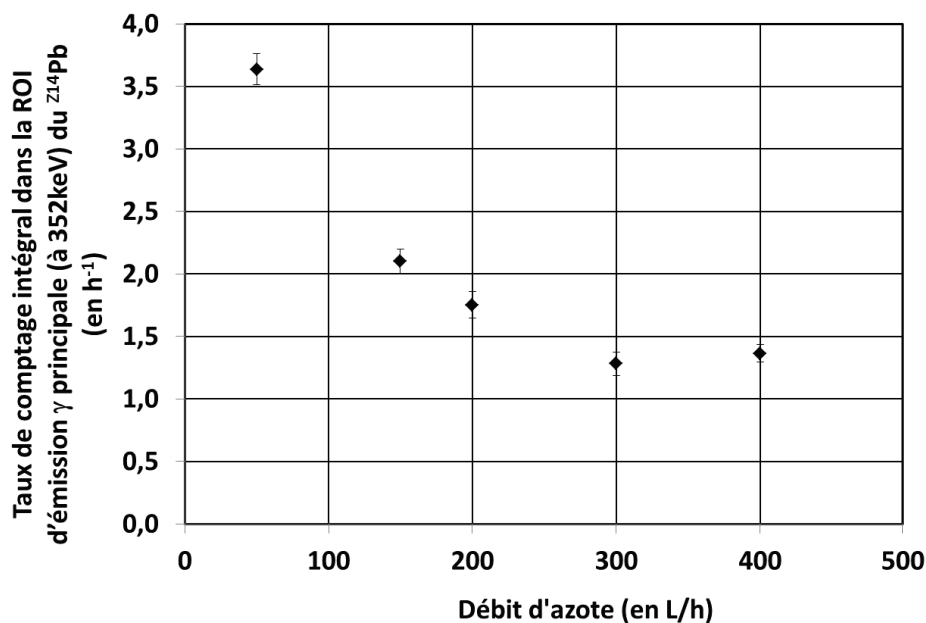
La concentration du radon dans le laboratoire oscille entre 15 et 30 Bq/m<sup>3</sup> au cours de l'année. Le radon est un gaz noble et il diffuse à travers les parois du blindage du spectromètre GAMMA<sup>3</sup> et interfère avec la mesure. Comme détaillé précédemment, une injection de gaz dans la chambre de mesure du spectromètre a été effectuée.

Lors de la mesure de bruit de fond des détecteurs du spectromètre GAMMA<sup>3</sup> étudié dans le tableau 2.6, seule une injection d'azote évaporé depuis l'un des cryostats avait été effectuée. On remarque néanmoins que la diminution des pics d'émission  $\gamma$  imputables aux descendants du radon ( $^{214,212}\text{Pb}$  et  $^{214,212}\text{Bi}$ ) est déjà conséquente. En effet, un facteur de réduction de 4,8 de l'aire du pic à 1238 keV du  $^{214}\text{Bi}$  entre le bruit de fond de FRL08\_001 et celui du spectromètre GAMMA<sup>3</sup> est observé.

Afin d'accentuer la réduction de ces pics d'émission, différents débits contrôlés d'azote entre 0 et 500 L/h ont été injectés dans la chambre de mesure. Les bruits de fond correspondant ont été étudiés. Ces études permettent de relier directement ce débit à l'aire des pics du  $^{214}\text{Pb}$  et du  $^{214}\text{Bi}$  dans le bruit de fond du spectromètre GAMMA<sup>3</sup>.

La figure 2.20 illustre l'évolution du taux de comptage intégral dans la *ROI* de l'émission  $\gamma$  principale du  $^{214}\text{Pb}$  à 352 keV. On observe que ce taux de comptage diminue lorsque le débit d'azote injecté augmente. En revanche, aucun gain notable n'est observé lorsqu'on passe d'un débit d'azote injecté de 300 à 400 L/h. Ainsi, il semble qu'un débit d'azote de 300 L/h (soit un peu plus que 50 m<sup>3</sup>/semaine) soit optimal pour réduire l'influence du radon et de ses descendants dans le bruit de fond des détecteurs du spectromètre GAMMA<sup>3</sup>. Comme donné par le tableau 2.5, le taux de comptage intégral moyen (normalisé par 300 keV) du bruit de fond sur la gamme 100-400 keV est de 0,28 h<sup>-1</sup>/keV, et le taux de comptage intégral moyen normalisé (par la largeur de la *ROI*, *i.e.* 5,2 keV) dans la *ROI* considérée avec une injection d'azote à 300 ou 400 L/h est de 0,27 h<sup>-1</sup>/keV. Ainsi, l'augmentation de 300 L/h à 400 L/h ne permet pas de diminuer notablement l'aire à 352 keV du  $^{214}\text{Pb}$  car le comptage dans sa *ROI* n'est plus significatif.

L'injection directe d'azote évaporé depuis le cryostat d'un détecteur HPGe donne un taux de comptage moyen dans la région  $352 \pm 2,6$  keV de 2,5 coups/h (équivalent à un débit d'azote injecté moyen d'environ 100 L/h). Au regard de la figure 2.20, ce flux d'azote évaporé est donc trop faible pour purger efficacement les 50 L de la chambre de mesure.



**Figure 2.20** – Taux de comptage intégral (en  $\text{h}^{-1}$ ) dans la région d'intérêt de l'émission  $\gamma$  principale du  $^{214}\text{Pb}$  ( $\text{ROI} : 352 \pm 2,6 \text{ keV}$ ) en fonction du débit d'azote injecté. Ce comptage correspond à la moyenne des comptages relevés dans ATHOS, PORTHOS et ARAMIS. On remarque qu'au dessus d'un débit de 300 L/h, l'injection d'azote n'a plus d'effet sur le pic du  $^{214}\text{Pb}$ .

## 2.5 Gains en Activité Minimale Détectable (AMD)

L'utilisation d'un système de détection à haut rendement et à bas bruit de fond permet d'améliorer la détectabilité (*i.e.* l'activité minimale détectable) des radionucléides d'intérêt du TICE. À titre d'exemple, l'amélioration des AMD des radionucléides en spectrométrie d'émission  $\gamma$  (telle qu'elle est mise en œuvre sur une station SPALAX) est donnée dans le tableau 2.8 lors de la mesure d'une cellule gaz SPALAX sur le détecteur PORTHOS.

De plus, l'amélioration des AMD pour 10 des radionucléides parmi les plus importants (au sens de l'étude de Matthews (2005)) pour la surveillance du TICE est indiquée dans le tableau 2.9 pour la mesure en géométrie RASA lors de l'utilisation simultanée des détecteurs ATHOS et ARAMIS.

Enfin, l'amélioration des AMD pour 10 radionucléides parmi les plus importants pour la surveillance du TICE ainsi que pour la surveillance des anciens sites d'essais nucléaires est indiquée dans le tableau 2.10 pour la mesure en géométrie SG500 lors de l'utilisation simultanée d'ATHOS, de PORTHOS et d'ARAMIS.

Radionucléide	Raie $\gamma$ (keV)	AMD (en mBq)		Gain	Critère de certification du TICE (AMD en mBq)
		GAMMA <sup>3</sup>	BEGe5030		
<sup>131m</sup> Xe*	163,9	26	94	3,6	5
<sup>133m</sup> Xe*	249,8	8,9	30	3,4	5
<sup>133</sup> Xe*	81,0	1,2	4,6	3,8	5
<sup>135</sup> Xe**	233,2	3,9	14	3,6	15

**Tableau 2.8** – Comparaison des Activités Minimales Détectables obtenues sur le spectromètre GAMMA<sup>3</sup> et sur un détecteur HPGe de type BEGe5030 (entouré de 15 cm de plomb et sans veto cosmique) pour les quatre radionucléides d'intérêt du TICE en géométrie de mesure de cellule gaz SPALAX. \* : AMD calculée pour une mesure de 6 jours, \*\* : AMD calculée pour une mesure de 2 jours.

### 2.5.1 En cellule de mesure gaz SPALAX

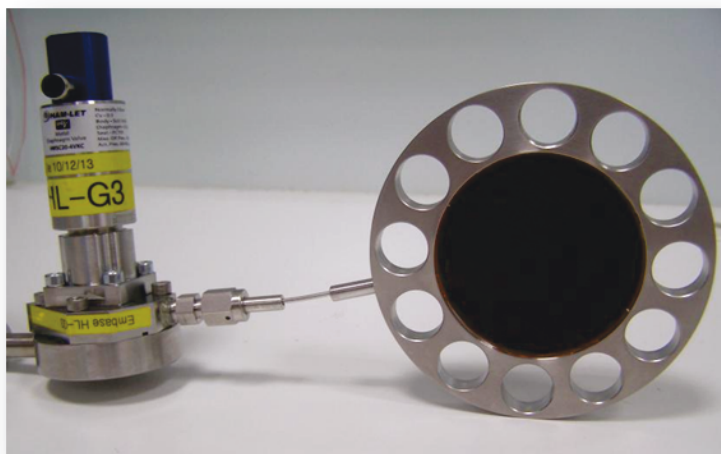
Rappelons que la cellule de mesure gaz SPALAX est une cellule d'aluminium bas bruit. Cette cellule est placée sur un détecteur HPGe, et la mesure des radionucléides est effectuée sur leurs émissions  $\gamma$ . Le rendement d'absorption total de détection d'une cellule de mesure gaz SPALAX a été obtenu expérimentalement et par simulation Monte-Carlo. Les résultats de ces mesures et de ces simulations sont illustrés en figure 2.8.

Les AMD obtenues avec le spectromètre GAMMA<sup>3</sup> ou avec un détecteur germanium de type BEGe5030 (tel que ceux installés en station) pour la mesure des radionucléides sont indiquées dans le tableau 2.8. Pour la mesure avec le spectromètre GAMMA<sup>3</sup>, la cellule de mesure gaz SPALAX est placée sur le détecteur PORTHOS. Ce détecteur est tout à fait semblable (en terme de type de fenêtre d'entrée et de taille de cristal) au détecteur BEGe5030 dont il est question dans le tableau 2.8. Ainsi, les gains en AMD (amélioration de 3,4 à 3,8 de celle-ci) sont conséquents et ils sont obtenus uniquement grâce à l'utilisation d'un blindage optimisé.

En revanche, ces résultats montrent que cette technique de mesure ne permet pas d'atteindre des AMD suffisamment basses pour correspondre aux critères de certification du TICE pour la mesure des radionucléides. Une cellule de mesure gaz équipée de fenêtres en fibre de carbone et pouvant être insérée entre ATHOS et ARAMIS est en cours de développement (cf. figure 2.21). Une telle géométrie de mesure (semblable à celle du filtre de prélèvement des aérosols atmosphériques RASA) permettrait de doubler le rendement d'absorption totale pour la mesure des radionucléides par spectrométrie  $\gamma$  directe. De plus, une quantification des deux radionucléides métastables sur leurs émissions  $K\alpha$ -X permettrait, pour cette nouvelle cellule gaz, d'atteindre les critères de certification pour la mesure des radionucléides. Néanmoins, il est montré dans le chapitre 2 que la mesure des radionucléides par coïncidence photon/électron permet aussi d'atteindre ces critères de certification.

### 2.5.2 Géométrie RASA

La géométrie RASA correspond à la géométrie de mesure d'un filtre de prélèvement des particules atmosphériques, sous sa forme comprimée. Dans ce cas, le filtre a une



**Figure 2.21** – Photographie d'une cellule gaz équipée de deux fenêtres en fibre de carbone. Cette cellule a été spécialement conçue pour être placée entre les détecteurs ATHOS et ARAMIS.

Radionucléide	Raie $\gamma$ (keV)	AMD (en mBq)		Gain
		GAMMA <sup>3</sup>	FRL08_001	
<sup>241</sup> Am	59,5	0,92	4,0	4,6
<sup>99m</sup> Tc	140,5	8,8	41	4,7
<sup>141</sup> Ce	145,4	0,79	2,5	3,2
<sup>132</sup> Te	228,3	0,9	2,9	3,0
<sup>131</sup> I	364,5	1,0	3,0	3,1
<sup>133</sup> I	529,9	4,3	13	2,9
<sup>140</sup> Ba	537,3	4,3	11	2,7
<sup>127</sup> Sb	685,1	4,6	11	2,5
<sup>95</sup> Zr	756,7	2,1	4,6	2,2
<sup>95</sup> Nb	765,8	1,22	3,6	3,0

**Tableau 2.9** – Comparaison des Activités Minimales Détectables obtenues sur le spectromètre GAMMA<sup>3</sup> et FRL08\_001 (pour une durée d'acquisition de 480000 s) pour dix radionucléides d'intérêt majeur pour la surveillance du TICE (cf. Matthews (2005)), en géométrie RASA. Il est à noter que la quantification sur une mesure 480 000 s des radionucléides à "vie courte" (<sup>99m</sup>Tc et <sup>133</sup>I) n'est pas optimale.

forme cylindrique et il est placé entre les détecteurs ATHOS et ARAMIS (comme illustré précédemment en figure 2.9). Les activités minimales obtenues pour 10 radionucléides d'intérêts, dans cette configuration de mesure, sont données dans le tableau 2.9.

On observe ainsi une diminution d'un facteur 4,6 de l'AMD pour le <sup>241</sup>Am. C'est le résultat de la combinaison de trois facteurs :

- l'utilisation de détecteurs HPGe équipés de fenêtres d'entrée en fibres carbone permet un meilleur rendement de détection pour les photons de 59,54 keV comparés à un détecteur dont la fenêtre d'entrée est en aluminium (comme c'est le cas pour le

détecteur du spectromètre FRL08\_001) ;

- dans cette géométrie, l'utilisation de deux détecteurs face à face permet de doubler le rendement d'absorption totale (comme illustré sur la figure 2.10) ;
- le bruit de fond dans la région inférieure à 100 keV du spectre énergétique est réduit pour les détecteurs du spectromètre GAMMA<sup>3</sup> par rapport au détecteur du spectromètre FRL08\_001.

De plus, on observe une diminution d'un facteur 4,7 de l'*AMD* du <sup>99m</sup>Tc (à 140,5 keV). Cette forte diminution est liée à l'augmentation d'un facteur supérieur à 2 du rendement de détection, mais aussi à la diminution du pic d'émission  $\gamma$  dû à l'activation du germanium (pic d'activation <sup>75m</sup>Ge à 139,7 keV dans les bruits de fond des détecteurs du spectromètre GAMMA<sup>3</sup>. Ce résulte donc directement de la couche en polyéthylène boré du blindage.

Pour les <sup>141</sup>Ce, <sup>132</sup>Te, <sup>131,133</sup>I on remarque une amélioration d'un facteur 3,2 à 3,0 de l'*AMD*. Cette amélioration est due à l'effet combiné : d'un meilleur rendement d'absorption totale, d'une meilleure résolution et d'un bruit de fond intégral plus bas.

Enfin, pour les <sup>127</sup>Sb, <sup>140</sup>Ba et <sup>95</sup>Zr, l'amélioration de l'*AMD* est d'un facteur 2,2 à 2,7. Ce qui est directement relié à l'amélioration du bruit de fond, l'amélioration de la résolution et l'augmentation du rendement d'absorption totale. Cette amélioration des *AMD* est moins prononcé que celles des <sup>141</sup>Ce, <sup>132</sup>Te, <sup>131,133</sup>I car comme illustré en figure 2.10, le gain en rendement entre les deux configurations de mesure diminue lorsque l'énergie augmente.

L'amélioration de l'*AMD* de <sup>95</sup>Nb est de 3,0, ce qui est meilleure que l'amélioration de celle du <sup>95</sup>Zr (radionucléide le plus proche en énergie). Ceci est due à la meilleure résolution en énergie des détecteurs HPGe utilisé en comparaison à celui du spectromètre FRL08\_001. Dans le cas de <sup>95</sup>Nb, cela permet une meilleure séparation avec le pic d'émission  $\gamma$  du <sup>214</sup>Bi à 768,4 keV.

Le critère de certification du TICE pour les mesures de filtres de prélèvement des particules atmosphériques est d'atteindre, pour un filtre de 70 mm de diamètre et de 6 mm d'épaisseur, une *AMD* de 24 mBq au <sup>140</sup>Ba en moins de 7 jours. Une mesure effectuée avec le spectromètre GAMMA<sup>3</sup> permet d'atteindre cette *AMD* en 5 heures.

### 2.5.3 Géométrie SG500

Quelques *AMD* de radionucléides d'intérêts du spectromètre GAMMA<sup>3</sup> en géométrie SG500 pour une mesure de 480000 s sont données dans le tableau 2.10. À titre de comparaison, les mêmes *AMD* sont données pour le détecteurs FRL08\_001.

Radionucléide	Raie $\gamma$ (keV)	AMD (en mBq)		Gain
		GAMMA <sup>3</sup>	FRL08_001	
<sup>240</sup> Pu	45,2	$2,4 \cdot 10^3$	$8,9 \cdot 10^3$	3,7
<sup>239</sup> Pu	51,6	$3,9 \cdot 10^3$	$1,4 \cdot 10^4$	3,6
<sup>241</sup> Am	59,5	3,4	16	4,8
<sup>234</sup> Th	63,3	31	$1,8 \cdot 10^2$	5,8
<sup>235</sup> U	185,7	2,7	8,7	3,2
<sup>134</sup> Cs	604,6	3,1	10	3,4
<sup>137</sup> Cs	661,7	3,7	9,7	2,6
<sup>228</sup> Ac	911,2	11	35	3,2
<sup>234m</sup> Pa	1001,0	$3,2 \cdot 10^2$	$1,0 \cdot 10^3$	3,2
<sup>60</sup> Co	1173,2	3,4	9,3	2,8

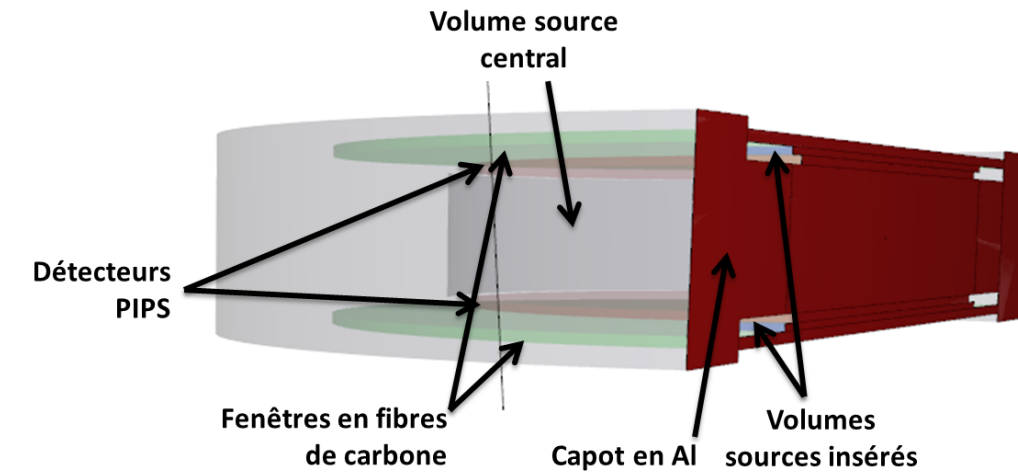
**Tableau 2.10** – Comparaison des Activités Minimales Détectables obtenues sur le spectromètre GAMMA<sup>3</sup> ou FRL08\_001 pour une acquisition de 480000 s de 10 radionucléides d'intérêt majeur pour la surveillance des sites des essais nucléaires, en géométrie SG500 (matrice équivalente eau).

#### 2.5.4 Gains en AMD : bilan

Les tableaux 2.8, 2.9 et 2.10 illustrent le gain apporté par le spectromètre GAMMA<sup>3</sup> pour la mesure directe de traces de radioactivité. Ces gains permettent d'atteindre des AMD parmi les meilleures publiées pour un spectromètre de surface. Le spectromètre GAMMA<sup>3</sup> associe donc facilité de maintien en conditions opérationnelles et AMD de très bas niveau. Il constitue ainsi est un outil de pointe pour les analyses radiologiques (et particulièrement en cas de crise).

Ce spectromètre garantit de meilleures AMD que les systèmes concurrents pour une même durée d'acquisition. Et donc par exemple, dans le cas de la mesure à bas-niveau de filtres de prélèvement des particules atmosphérique, cela permet de surveiller des événements radiologiques à plus longue distance.

Par ailleurs, les AMD d'autres spectromètres sont atteintes beaucoup plus rapidement par le spectromètre GAMMA<sup>3</sup>. En effet, l'équation 1.36 montre que sous sa forme la plus basique,  $AMD \propto 1/\sqrt{T_{acq}}$ . Ainsi, en comparant deux spectromètres "une AMD deux fois plus faible pour une durée d'acquisition identique" équivaut à "une durée d'acquisition 4 fois plus courte pour des AMD identiques". Les avantages liés à des acquisitions de plus courtes durée sont multiples. En particulier, cela permet : (i) d'augmenter la détectabilité des radionucléides de période courte (*i.e.* inférieure à quelques jours), (ii) d'augmenter la disponibilité du spectromètre, et (iii) d'obtenir une réponse rapide concernant une situation radiologique donnée. Ces trois points sont particulièrement importants pour l'utilisation du spectromètre GAMMA<sup>3</sup> comme outil d'analyse en cas de crise.



**Figure 2.22** – Schéma de simulation sous GEANT4 du détecteur PIPSTBox. Le volume de gaz considéré est le volume inséré entre les deux PIPS (le "volume source central", égal à  $10,6 \text{ cm}^3$ ), et les deux volumes insérés entre les PIPS et les fenêtres de carbone (les "volumes sources insérés", de  $0,6 \text{ cm}^3$  chacun, sont les volumes de gaz compris entre un détecteur PIPS et une fenêtre en fibre de carbone). Les principaux volumes pris en compte dans la simulation sont détaillés : les fenêtres en fibres de carbone sont en vert, les détecteurs PIPS sont en vert clair, le capot aluminium en gris clair, le volume de source central en gris foncé et les volumes de sources insérés en bleu.

## 2.6 Étude des détecteurs au silicium

Le détecteur PIPSTBox a été conçu pour l'analyse des échantillons issus des stations Gaz Noble du réseau du TICE. Ces échantillons peuvent contenir certains radionucléides d'intérêt, ainsi que du  $^{222}\text{Rn}$  et ses descendants. Contrairement à un échantillon produit par une station de prélèvement des aérosols atmosphériques et comme cela a été expliqué en section 1.5.3, les descendants du  $^{220}\text{Rn}$  ne sont pas observables dans les échantillons produits par une station Gaz Noble.

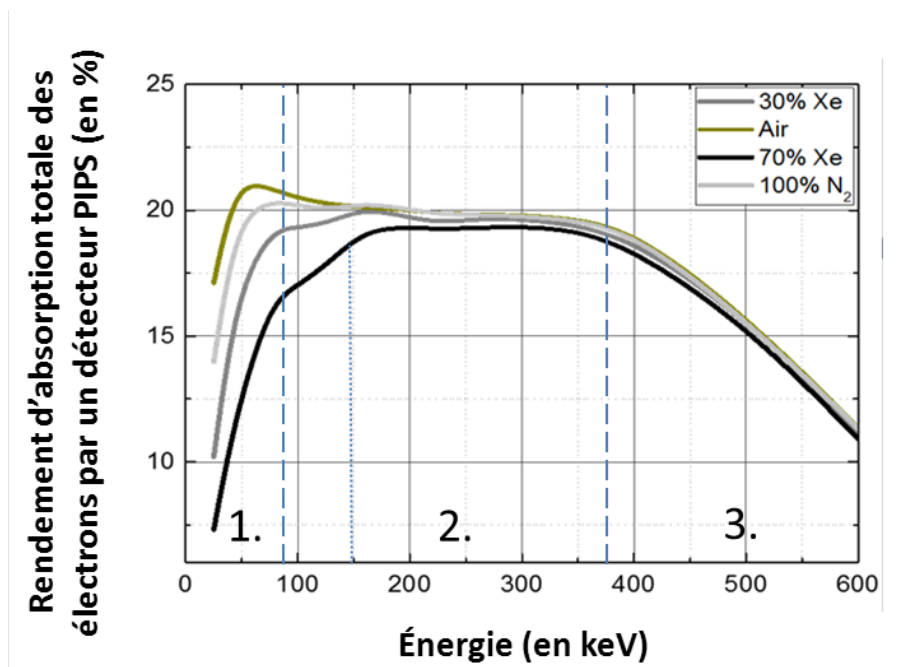
La réponse des détecteurs PIPS aux photons et aux électrons émis par les  $^{131m}, ^{133m}, ^{133}, ^{135}\text{Xe}$ , le  $^{214}\text{Pb}$  et  $^{214}\text{Bi}$  est étudiée dans cette partie. Les résultats présentés sont issus des simulations Monte-Carlo sous GEANT4. Le modèle du détecteur PIPSTBox utilisé pour ces simulations est illustré en figure 2.22.

### 2.6.1 Rendements de détection pour les électrons

Les électrons émis par les radionucléides et les descendants du  $^{222}\text{Rn}$  sont : (i) soit des électrons de conversion (CE), (ii) soit des électrons Auger, ou (iii) soit des électrons issus de la décroissance  $\beta^-$ . Les rendements de détection ne sont pas calculés de la même façon selon les cas. Pour les CE et les électrons Auger, le rendement de détection est égal au ratio entre le nombre d'électrons émis et le nombre d'électrons détectés dans la *ROI* qui leur est attribuée.

Le spectre d'énergie des électrons issus de la décroissance  $\beta^-$  est continu. Le rendement de détection de ces électrons correspond alors au ratio entre le nombre d'électrons émis et le comptage intégral du spectre mesuré, calculé entre deux bornes,  $E_{min}$  et  $E_{max}$ .  $E_{max}$  est caractéristique de la décroissance  $\beta^-$  considérée, tandis que  $E_{min}$  (aussi appelée énergie de coupure) est caractéristique du détecteur. Ce rendement de détection pour les électrons  $\beta^-$  est bien différent de celui des CE et des électrons Auger. Il suffit qu'un électron  $\beta^-$  dépose une énergie supérieure à  $E_{min}$  dans le détecteur pour qu'il soit considéré comme détecté, tandis qu'un CE ou un électron Auger doit déposer dans le détecteur une énergie suffisante pour participer au comptage dans sa *ROI* associée et être ainsi considéré comme correctement détecté.

### Rendements de détection des électrons Auger et des CE



**Figure 2.23** – Rendements simulés d'absorption totale des électrons par un PIPS. Différentes compositions du gaz à 800 hPa ont été prises en compte. Les zones 1. (cette zone est plus grande pour la courbe en noire correspondant à un gaz composé à 70 % de xénon), 2. et 3. sont détaillées sur la figure. Dans la zone 1. le rendement d'absorption totale des électrons est fortement influencé par la composition du gaz. Dans la zone 2. le rendement d'absorption totale des électrons n'est pas influencé par la composition du gaz. Enfin, en zone 3. le rendement d'absorption totale des électrons diminue avec leur énergies car ceux-ci sont maintenant suffisamment énergétique pour traverser totalement le détecteur PIPS.

Les rendements de détection des CE et des électrons Auger par un détecteur PIPS dans la géométrie PIPSBox sont fournis en figure 2.23. Dans cette simulation, plusieurs compositions de gaz à 800 hPa sont considérées. Ces différents mélanges de gaz sont :

- de l'air (donné à titre indicatif).



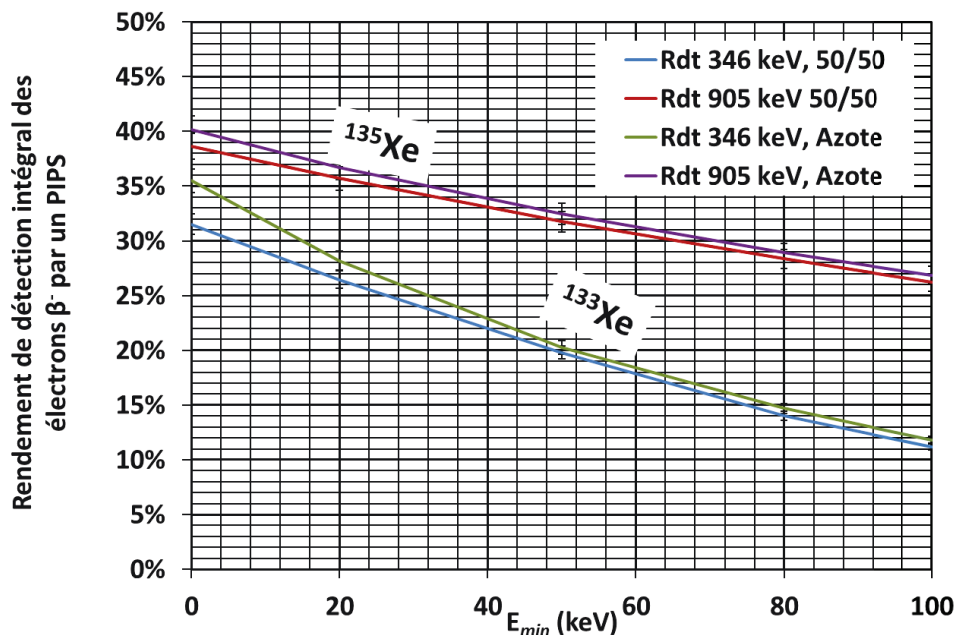
- un gaz de N<sub>2</sub> pur, simulant la composition d'un étalon de xénon.
- un gaz composé de 30 % de xénon et de 70 % d'azote, ce qui correspond à la composition typique du gaz dans une cellule de mesure gaz SPALAX.
- un gaz composé de 70 % de xénon et de 30 % d'azote, ce qui correspond à une possible composition du gaz dans une version optimisée du procédé gaz SPALAX.

La figure 2.23 montre que, pour toutes les compositions de gaz considérées, trois régions d'énergie se distinguent pour le rendement de détection des CE et des électrons Auger : une zone à basse énergie, une zone de moyenne énergie et une zone de haute énergie.

1. La zone de basse énergie dépend de la composition du gaz. Elle s'étend de 30 à 80 keV pour un gaz composé d'air, d'azote ou d'un mélange 30/70 en xénon/azote. En revanche, elle s'étend de 30 à 140 keV pour un gaz composé d'un mélange 70/30 en xénon/azote. Dans cette zone, le rendement de détection des CE et des électrons Auger est très influencé par la composition du gaz. Le dépôt partiel d'énergie (ou l'absorption) des électrons dans le gaz diminue le rendement. Les électrons Auger des radioxénons ont des énergies comprises entre 23,5 et 36 keV. Le rendement de détection des détecteurs PIPS pour ces électrons est inférieur à 17 % pour un gaz composé d'azote et inférieur à 10 % pour un gaz composé d'un mélange 30/70 en xénon/azote. Le rendement de détection d'un détecteur PIPS pour les K-CE du <sup>133</sup>Xe (à 45 keV) varie quant à lui de 16,6 % (dans un mélange 30/70 en xénon/azote) à 21,1 % (dans un gaz d'azote). Ce rendement est donc très sensible à la composition du gaz.
2. La zone de moyenne énergie s'étend de la limite haute de la zone de basse énergie jusqu'à 380 keV. Dans cette zone d'énergie, les rendements d'absorption totale des électrons ne sont pas influencés par le gaz et sont constants. Le rendement de détection d'un détecteur PIPS en géométrie PIPSBox pour les K-CE et L-CE des <sup>131m,133m</sup>Xe est compris entre 19 et 20 %.
3. La zone de haute énergie correspond aux électrons d'énergie supérieure à 380 keV. Dans cette gamme d'énergie, le rendement de détection d'absorption totale n'est pas influencé par la composition du gaz. En revanche, les électrons sont suffisamment énergétiques pour traverser entièrement le détecteur PIPS sans déposer l'intégralité de leur énergie. Cela explique pourquoi les courbes de rendement d'absorption totale (quelle que soit la composition du gaz) diminuent lorsque l'énergie des électrons augmente. En revanche, aucun des électrons de conversion d'intérêt n'est compris dans cette gamme d'énergie ; seuls les électrons  $\beta^-$  des radioxénons ou des descendants du <sup>222</sup>Rn ont de telles énergies.

### Rendements de détection des électrons $\beta^-$

Le spectre énergétique des électrons issus d'une désintégration  $\beta^-$  d'un radionucléide est fonction : (i) du radionucléide considéré (Z et N) et (ii) de l'énergie dégagée (notée  $E_{max}$ ) lors de cette désintégration. Les rendements de détection intégraux par un détecteur PIPS des électrons  $\beta^-$  émis par les <sup>133,135</sup>Xe sont donnés en figure 2.24. Ces

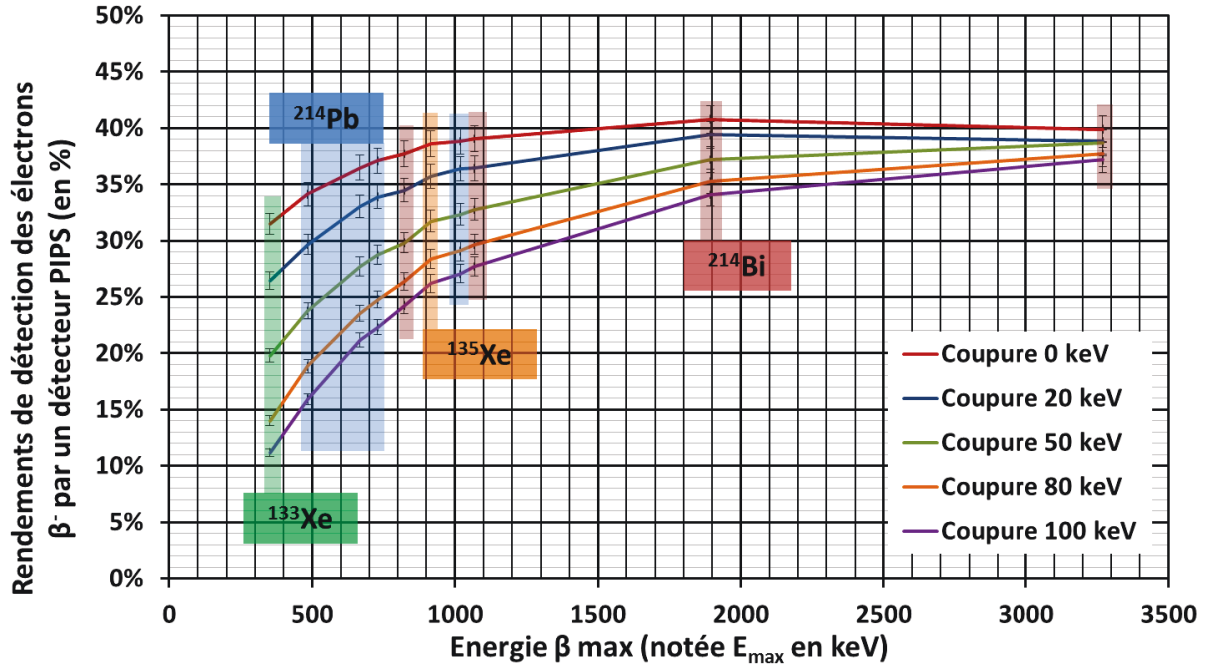


**Figure 2.24** – Rendements d'absorption totale simulés des électrons issus de la décroissance  $\beta^-$  en fonction de l'énergie de coupure (ou  $E_{min}$ ), par un PIPS en géométrie PIPSB. Deux compositions de gaz à 1000 hPa sont considérées : un gaz d'azote pur, et un mélange 50/50 d'azote et de xénon. Deux décroissances  $\beta^-$  sont considérées : celle du  $^{133}\text{Xe}$  ( $E_{max}=346$  keV) et celle du  $^{135}\text{Xe}$  ( $E_{max}=905$  keV).

rendements sont donnés en fonction de  $E_{min}$  pour deux compositions différentes de gaz (50 %/50 %Xe/ $N_2$  et 100 %  $N_2$  à 1000 hPa). Les énergies de coupures considérées sont 0, 20, 50, 80 et 100 keV. Une énergie de coupure de 0 keV (*i.e.* pas d'énergie de coupure) est un cas "idéal" de fonctionnement du détecteur PIPS. En réalité, le bruit électronique de mesure et le courant de fuite du semi-conducteur (polarisé) imposent une énergie de coupure entre 20 et 60 keV. Une énergie de coupure entre 60 et 100 keV correspond à un détecteur PIPS en fonctionnement non nominal. Comme attendu, plus l'énergie de coupure est basse, meilleur est le rendement de détection d'une émission  $\beta^-$ . En revanche, plus l'énergie de coupure est haute, moins ce rendement de détection est sensible à la composition du gaz.

Le rendement de détection des électrons  $\beta^-$  en fonction de leur  $E_{max}$  pour différentes énergies de coupure est donné en figure 2.25. Le gaz considéré est un mélange 50/50 d'azote et de xénon à 1000 hPa. Les distributions d'électrons  $\beta^-$  considérées sont celles des  $^{133,135}\text{Xe}$  (d' $E_{max}$  de 346 et 905 keV), du  $^{214}\text{Pb}$  (les émissions d' $E_{max}$  de 485, 667, 729 et 1019 keV) et du  $^{214}\text{Bi}$  (les émissions d' $E_{max}$  de 822, 1068, 1894 et 3270 keV). Seules quelques-unes des émissions  $\beta^-$  des  $^{214}\text{Pb}$  et  $^{214}\text{Bi}$  ont été considérées. Elles ont été sélectionnées de façon à avoir plusieurs points d' $E_{max}$  différentes et une probabilité d'émission non négligeable.

La figure 2.25 illustre la forte sensibilité à l'énergie de coupure des rendements de détection des électrons  $\beta^-$  de faible  $E_{max}$ . En particulier, pour le  $^{133}\text{Xe}$  ce rendement de

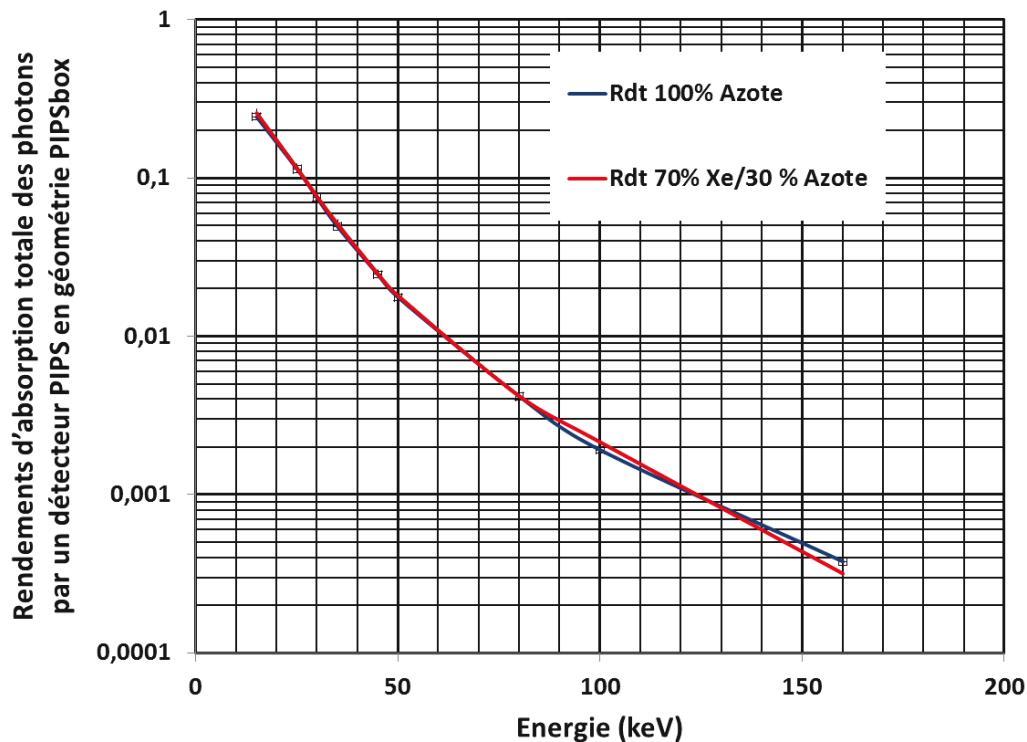


**Figure 2.25** – Rendements de détection simulés des électrons issus de la décroissance  $\beta^-$  en fonction de leur  $E_{max}$ , pour différentes énergies de coupure (ou  $E_{min}$ ), pour un détecteur PIPS en géométrie PIPSBox. Le gaz inséré dans la PIPSBox est un mélange 50/50 d'azote et de xénon à 1000 hPa. Les émissions  $\beta$  du  $^{214}\text{Pb}$  sont dans la zone bleue clair, celles du  $^{214}\text{Pb}$  sont dans la zone rouge clair, l'émission du  $^{133}\text{Xe}$  est dans la zone vert clair et enfin celle du  $^{135}\text{Xe}$  est dans la zone orange clair.

détection diminue de 20 à 14 % lorsque l'énergie de coupure passe de 50 keV à 80 keV (et donc lorsqu'un détecteur PIPS n'est plus en fonctionnement nominal). Cela souligne deux points fondamentaux des mesures effectuées à l'aide des détecteurs PIPS : (i) il est important de s'assurer du fonctionnement nominal de ces détecteurs (isolement électrique, pas de boucles de masse, câblage électrique optimal) pour éviter une dérive des rendements de détection, et (ii) il est prudent de considérer une énergie de coupure conservative (*i.e.* 50 keV) afin de s'assurer de la stabilité des rendements de détection.

## 2.6.2 Rendements de détection pour les photons

Pour la simulation des rendements de détection des photons, deux compositions de gaz à 800 hPa ont été étudiées : un gaz composé uniquement d'azote et un gaz composé d'un mélange 70/30 en xénon/azote. La détection de photons de 15,1 à 160,1 keV a été simulée, comme illustré en figure 2.26. Avec 500  $\mu\text{m}$  d'épaisseur, les détecteurs PIPS ne sont pas optimisés pour la mesure des photons  $\gamma$ . La simulation de photons de plus haute énergie, prenant en compte les émissions  $\gamma$  des  $^{133\text{m}},^{135}\text{Xe}$  (respectivement 233 keV et 249 keV) par exemple, n'est donc pas nécessaire. À 160 keV, le rendement d'un PIPS est inférieur à 0,04 %, et est donc négligeable. Aux énergies des photons  $\gamma$  du  $^{133}\text{Xe}$  et des photons X des  $^{214}\text{Pb}$  et  $^{214}\text{Bi}$  (entre 74 et 90,4 keV), les rendements de détection des photons pour les



**Figure 2.26** – Rendements d'absorption totale simulés des photons par un détecteur PIPS en géométrie PIPSBox. Deux compositions de gaz à une pression proche de la pression atmosphérique ont été prises en compte : un gaz composé uniquement d'azote et un gaz composé à 70 % de xénon et 30 % d'azote.

détecteurs PIPS sont faibles (de l'ordre de 0,4 %). Par ailleurs ces radionucléides émettent des électrons  $\beta^-$  simultanément avec ces photons. Ceux-ci ont donc peu de chance d'être significativement détectés dans un spectre électron.

En revanche, on observe que les photons K-X émis par les  $^{131m,133m,133,135}\text{Xe}$  ne peuvent pas être négligés. En effet, ils ont des énergies comprises entre 29,7 et 35,1 keV (cf. tableau 1.8), et le rendement de détection d'un détecteur PIPS pour ces photons varie entre 8,3 et 5,3 %. On remarque, de plus, que ces rendements de détection ne sont pas influencés par la composition du gaz.

### 2.6.3 Bilan

Dans le chapitre suivant, le détecteur PIPSBox est couplé à un détecteur HPGe pour la mesure en coïncidences photon/électron des radioxénons. Ainsi, le but du détecteur PIPS-Box n'est pas de mesurer en direct les radioxénons. Néanmoins, les simulations effectuées dans les sections 2.6 et 2.6.2 sur les interactions entre les particules qu'ils émettent et le détecteur montrent que :

- à basse énergie électron ( $< 100$  keV), le rendement d'absorption totale des électrons Auger ou de conversion interne est influencé par la composition du gaz.
- les rendements de détection des électrons  $\beta^-$  ou d'absorption totale des photons ne

sont pas significativement influencés par la composition du gaz.

- les rendements de détection des électrons  $\beta^-$  nécessitent la définition d'une énergie de coupure (ou  $E_{min}$ ). Cette énergie de coupure est imposée par le système de détection. Les simulations montrent que plus  $E_{min}$  est basse, meilleurs sont les rendements de détection. En revanche, elles montrent aussi que les rendements sont très sensibles à cette énergie de coupure. Ceci est d'autant plus vrai que le  $E_{max}$  de l'émission  $\beta$  considérée est faible.
- le retour d'expérience sur les mesures avec le détecteur PIPSBox montre que cette énergie de coupure est sujette à des fluctuations. L'énergie de coupure a été choisie à 55 keV. Cette valeur est conservative car elle ne permet pas d'obtenir le meilleur rendement  $\beta$  dans chacun des cas de figure, mais elle permet en revanche d'être certain de la stabilité de ces rendements entre les différentes expériences.
- le rendement d'absorption totale des photons d'énergie supérieure à 60 keV est négligeable (inférieur à 1 %). Ainsi seuls les photons X émis par les radionucléides peuvent être mesurés efficacement par les détecteurs au silicium.

# Chapitre 3

## Spectrométrie en coïncidences haute résolution

### Table des matières

---

<b>3.1</b>	<b>Introduction et généralités . . . . .</b>	<b>91</b>
<b>3.2</b>	<b>Spectrométrie photon/électron des radioxénons . . . . .</b>	<b>92</b>
3.2.1	Principe de mesure et simulation . . . . .	92
3.2.2	Émissions de particules . . . . .	93
	Le $^{131m}\text{Xe}$ . . . . .	93
	Le $^{133m}\text{Xe}$ . . . . .	96
	Le $^{133}\text{Xe}$ . . . . .	97
	Le $^{135}\text{Xe}$ . . . . .	101
3.2.3	Détermination des rendements de détection . . . . .	103
3.2.4	Estimation du bruit de fond . . . . .	105
	Bruit de fond et <i>AMD</i> des radioxénons . . . . .	105
	Blanc de mesure . . . . .	108
	Cas du $^{135}\text{Xe}$ . . . . .	109
	Cas du $^{133}\text{Xe}$ . . . . .	110
	Cas du $^{133m}\text{Xe}$ . . . . .	111
	Cas du $^{131m}\text{Xe}$ . . . . .	114
	Synthèse . . . . .	115
3.2.5	Application : cas de DPRK 2013 . . . . .	119
<b>3.3</b>	<b>Mesures de coïncidences photon/photon . . . . .</b>	<b>122</b>
3.3.1	Radionucléides concernés . . . . .	122
3.3.2	Mesure de bruit de fond . . . . .	122
3.3.3	Étude de cas : le $^{134}\text{Cs}$ . . . . .	126
<b>3.4</b>	<b>Autres mesures de coïncidences : études et applications . . .</b>	<b>132</b>
3.4.1	À trois photons : le $^{110m}\text{Ag}$ . . . . .	133
3.4.2	Coïncidences X/ $\gamma$ . . . . .	135
3.4.3	Coïncidences électron/électron . . . . .	137
	Mesure de bruit de fond . . . . .	137

Mesure de radionucléides . . . . .	139
Application aux coïncidences photon/électron . . . . .	140

---

## 3.1 Introduction et généralités

Les mesures de coïncidences ont été présentées brièvement dans le chapitre 1. Ce chapitre revient plus précisément sur ces mesures, afin :

- d'en énoncer les principes généraux,
- de présenter le traitement et l'analyse des données,
- de présenter la mise en place de simulations Monte-Carlo de ces mesures,
- et enfin de présenter les gains que représentent de telles mesures par rapport aux mesures directes.

Une mesure de coïncidences implique le fonctionnement simultané (*i.e.* pendant une fenêtre temporelle donnée) de plusieurs détecteurs. Un événement détecté est alors caractérisé par plusieurs dépôts d'énergie simultanés. En spectrométrie, les mesures en coïncidences permettent : (i) de diminuer le bruit de fond en augmentant la taille des spectres et (ii) d'effectuer des analyses radio-spécifiques. Par exemple, le  $^{60}\text{Co}$  (dont le schéma est donné figure 1.1, cf. chapitre 1) émet deux photons à la suite : un photon de 1332,5 keV et un photon de 1173,2 keV. Ainsi sur un spectre à deux dimensions, la *ROI* (centrée sur 1173,2 keV selon un axe et sur 1332,5 keV sur l'autre axe) est spécifique au  $^{60}\text{Co}$ .

De manière générale, la probabilité qu'un événement de coïncidence donné (une particule  $p_1$  émise simultanément avec une particule  $p_2$ , cette coïncidence est notée  $p_1/p_2$ ) du radionucléide  $X$  ait lieu est définie comme :  $P_{p_1/p_2}(X)$ . Cette probabilité s'exprime comme le produit suivant :

$$\begin{aligned} P_{p_1/p_2}(X) &= P_{p_2}(X) \times P_{p_1|p_2}(X), \\ &= P_{p_1}(X) \times P_{p_2|p_1}(X). \end{aligned} \quad (3.1)$$

où  $P_{p_1}(X)$  et  $P_{p_2}(X)$  sont les probabilités d'émission de  $p_1$  et  $p_2$  pour  $X$ ,  $P_{p_1|p_2}(X)$  est la probabilité conditionnelle d'émission de  $p_1$  sachant que  $p_2$  a été émise (cette condition est notée  $p_1|p_2$ ), et  $P_{p_2|p_1}(X)$  est la probabilité conditionnelle d'émission de  $p_2$  sachant que  $p_1$  a été émise (cette condition est notée  $p_2|p_1$ ). On remarquera que la barre en diagonale / signifie "en coïncidence" et la barre verticale | signifie "sachant que".

Cette probabilité de coïncidence permet d'estimer l'importance des événements de coïncidences considérés dans la décroissance d'un radionucléide. Mais la seule connaissance de cette probabilité ne permet pas d'estimer la détectabilité en coïncidence d'un radionucléide. Pour cela, on définit son rendement de détection en coïncidence. Ainsi, pour la mesure du comptage net  $C_{net}$  d'un radionucléide  $X$  dans une région d'intérêt  $ROI(p_1/p_2)$  qui lui est propre (dans le cas où la désintégration de  $X$  entraîne l'émission de  $p_1$  et de  $p_2$ ), son rendement de détection en coïncidences  $\epsilon_{p_1/p_2}(X)$  (parfois noté  $\epsilon_{ROI(X)}(X)$ ) est défini de la façon suivante :

$$dC_{net}dt = -\epsilon_{p_1/p_2}(X)dN_Xdt. \quad (3.2)$$



où pendant un court instant  $dt$ ,  $dC_{net}$  est la variation du comptage net dans  $ROI(p_1/p_2)$ , et  $dN_X$  est la variation ( $dN_X < 0$ ) du nombre d'atomes de  $X$ . Cette définition du rendement de détection en coïncidence (ou plus simplement rendement de coïncidence) est tout à fait similaire avec celle que l'on retrouve dans Schroettner *et al.* (2010). Les équations donnant  $\epsilon_{p_1/p_2}(X)$  et permettant de relier l'activité mesurée d'un radionucléide au comptage net (dans sa  $ROI$  caractéristique) sont fonction du radionucléide et du système de détection. Elles seront détaillées par la suite au cas par cas.

Pour un radionucléide donné, les mesures d'étalons d'activité et les simulations Monte-Carlo permettent d'obtenir son rendement de détection en coïncidences. Les modèles de simulation sous GEANT4 utilisés durant ces travaux ont été adaptés aux mesures par coïncidences. Dans ce cas :

- plusieurs *volumes sensibles de détection* sont définis. Un *volume sensible de détection* est une classe du modèle de simulation. C'est un volume dans lequel le dépôt simulé d'énergie d'une particule le traversant est relevé.
- une désintégration est caractérisée par l'émission simultanée d'une ou plusieurs particules.
- les dépôts simulés d'énergie dans chacun des volumes sensibles de détection pour chaque événement sont enregistrés dans les histogrammes correspondants.

Concernant les mesures d'activité, la carte d'acquisition DGF-Pixie-4 permet de définir un événement comme une combinaison de détections simultanées dans chacune de ces 4 voies d'acquisition. Les spectres de coïncidences sont ensuite construits à partir des fichiers en mode-liste de ces acquisitions.

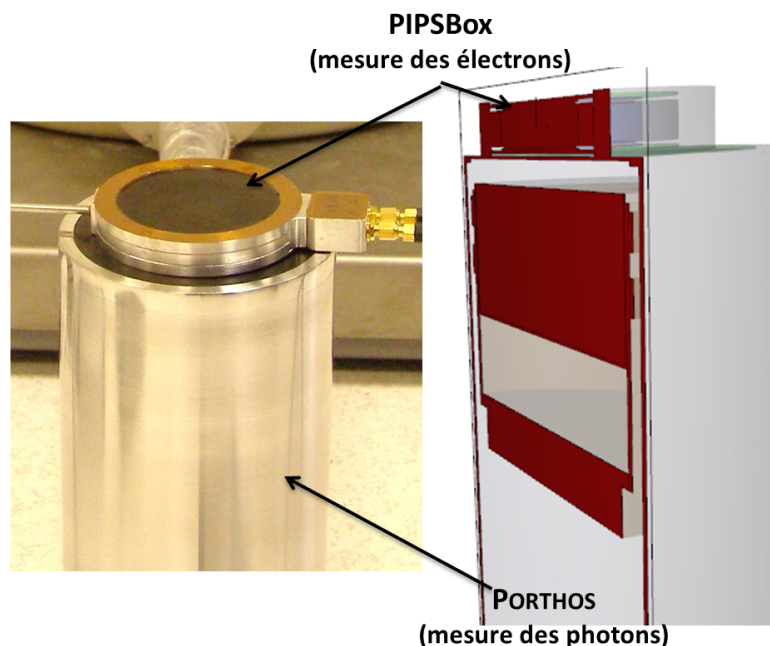
Différents types de mesures de coïncidences obtenues via des détecteurs présentant une haute-résolution en énergie ont été mis en œuvre et sont présentées dans ce chapitre. Ainsi :

- dans un premier temps la mesure des radioxénons par coïncidences photon/électron est présentée dans la section 3.2,
- dans un second temps la mesure des aérosols radioactifs par coïncidences photon/photon est abordée. Ces mesures sont présentées dans la section 3.3.
- enfin, dans un troisième temps des mesures de coïncidences plus spécifiques (à trois photons,  $X/\gamma$  ou électron/électron) sont présentées dans la section 3.4.

## 3.2 Spectrométrie photon/électron des radioxénons

### 3.2.1 Principe de mesure et simulation

Les mesures traitées dans cette section correspondent à une configuration impliquant le détecteur PIPSBox et le détecteur PORTHOS. Pour cette configuration, le détecteur PIPSBox est posé au contact du détecteur PORTHOS, tel qu'illustré en figure 3.1.



**Figure 3.1** – Photographie (à gauche) et modèle de simulation Monte-Carlo (à droite) de la configuration HPGe (détecteur PORTHOS)/PIPSBox de mesure des coïncidences photon/électron.

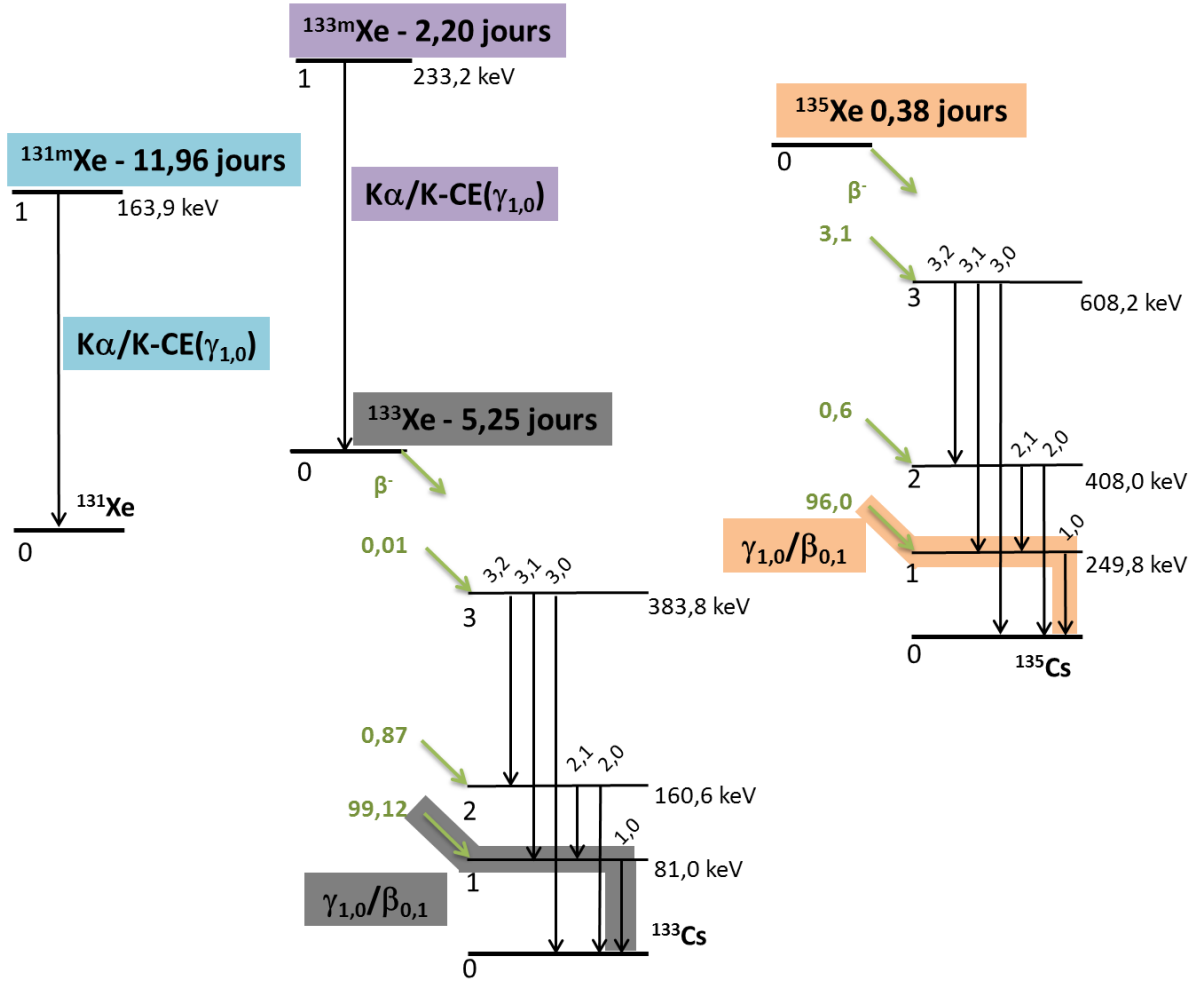
### 3.2.2 Émissions de particules

#### Le $^{131m}\text{Xe}$

Le schéma de décroissance du  $^{131m}\text{Xe}$  est donné sur la partie gauche de la figure 3.2. Les quatre émissions d'électrons CE pour cet isotope du xénon sont (cf. Chisté *et al.* (2014)) :

- les électrons K-CE, émis à 129,4 keV avec une probabilité de 61,4 % ;
- les électrons L-CE, émis entre 158,5 et 159,2 keV avec une probabilité de 28,6 % ;
- les électrons M-CE, émis entre 162,8 et 163,3 keV avec une probabilité de 6,6 % ;
- et les électrons N-CE, émis entre 163,7 et 163,9 keV avec une probabilité de 1,4 %.

Comme notifié dans le premier chapitre, chaque émission d'électron de conversion interne est suivie d'un réarrangement électronique qui est accompagné de l'émission de photons X ou d'électrons Auger (ces deux émissions sont en compétition). L'énergie transportée par les photons X ou les électrons Auger émis lors d'un réarrangement de couche L, M ou N (*i.e.* suite à l'émission d'un électron EC-L, d'un électron EC-M ou d'un électron EC-N) est comprise entre 0,1 et 5,5 keV. Ces particules ne sont détectables : ni par les détecteurs PIPS car leur énergie est inférieure à l'énergie de coupure ; ni par les détecteurs HPGe car leur énergie est trop faible pour permettre à ces particules d'atteindre le cristal de germanium. En effet, pour atteindre un cristal de germanium, une particule émise dans le volume gaz de la PIPSBox doit traverser au minimum deux fenêtres de carbone et le volume mort face avant du détecteur germanium. Par exemple, il faut qu'un photon

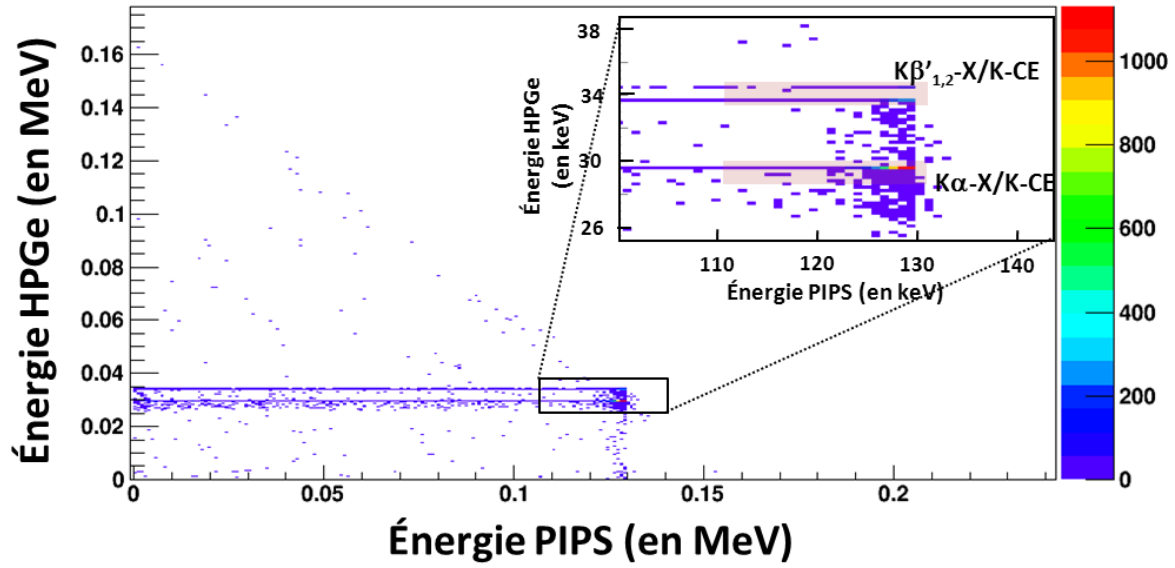


**Figure 3.2** – Schémas de décroissance des quatre isotopes radioactifs du xénon (cf. Chisté *et al.* (2014) et Axelsson *et al.* (2012)). Les événements de coïncidences qui vont servir à la mesure de ces radionucléides sont mis en avant :  $K\alpha/K\text{-CE}(\gamma_{1,0})$  pour les  $^{131m}, ^{133m}\text{Xe}$  (respectivement en bleu et en violet sur la figure),  $\gamma_{1,0}/\beta_{0,1}$  pour les  $^{133}, ^{135}\text{Xe}$  (respectivement en gris et en orange sur la figure).

ait une énergie supérieure à environ 10 keV pour pouvoir atteindre le cristal de germanium.

Au final lors d'une mesure en coïncidences des émissions photon/électron du  $^{131m}\text{Xe}$  seuls les événements K-X/K-CE sont observables, comme illustré dans la figure 3.3. Huit émissions de photons K-X sont à considérer, elles sont classées en trois groupes. Les détecteurs HPGe de type BEGe5030P ont une résolution typique de 0,5 keV aux énergies considérées, il n'est donc pas possible de discerner les différentes raies X d'un même groupe. Ces groupes sont :

- le groupe  $K\alpha\text{-X}$  :  $K\alpha_2$  (29,5 keV) et  $K\alpha_1$  (29,8 keV) avec une probabilité d'émission de 44,2 %. L'énergie moyenne pondérée de ce groupe est de 29,7 keV.
- le groupe  $K\beta'_1\text{-X}$  :  $K\beta_3$  (33,6 keV),  $K\beta_1$  (33,6 keV) et  $K\beta'_5$  (33,9 keV) avec une probabilité d'émission de 8,3 %. L'énergie moyenne pondérée de ce groupe est de 33,7 keV.



**Figure 3.3** – Spectre simulé de coïncidences photon/électron correspondant à la mesure d'un étalon de  $^{131m}\text{Xe}$  par les détecteurs PIPSBox et PORTHOS. Les ROI des événements de coïncidences K-X/K-CE sont mises en avant dans l'encart en haut à droite de la figure.

- le groupe  $K\beta'_{2,3}\text{-X}$  :  $K\beta_2$  (34,4 keV),  $K\beta_4$  (34,5 keV) et  $KO_{2,3}$  (34,6 keV) avec une probabilité d'émission de 2,0 %. L'énergie moyenne pondérée de ce groupe est de 34,5 keV.

La quantification du  $^{131m}\text{Xe}$  s'effectue à partir de la coïncidence  $K\alpha\text{-X/K-CE}$ . La probabilité d'occurrence de cet enchainement, noté  $P_{K\alpha\text{-X/K-CE}}(^{131m}\text{Xe})$ , s'écrit :

$$P_{K\alpha\text{-X/K-CE}}(^{131m}\text{Xe}) = P_{K\alpha\text{-X}}(^{131m}\text{Xe})P_{K\text{-CE}|K\alpha\text{-X}}(^{131m}\text{Xe}) ; \quad (3.3)$$

où  $P_{K\alpha\text{-X}}(^{131m}\text{Xe})$  est la probabilité d'émission d'un photon  $K\alpha\text{-X}$  et  $P_{K\text{-CE}|K\alpha\text{-X}}(^{131m}\text{Xe})$  est la probabilité d'émission d'un électron K-CE sachant que l'émission d'un photon  $K\alpha\text{-X}$  a eu lieu. Cette probabilité conditionnelle sera assimilée à un "rapport d'embranchement". Dans le cas du  $^{131m}\text{Xe}$ , le rapport d'embranchement  $P_{K\text{-CE}|K\alpha\text{-X}}(^{131m}\text{Xe})$  vaut 1, et l'équation 3.3 se simplifie directement en :

$$P_{K\alpha\text{-X/K-CE}}(^{131m}\text{Xe}) = P_{K\alpha\text{-X}}(^{131m}\text{Xe}), \quad (3.4)$$

car seule l'émission d'un électron K-CE d'un atome de  $^{131m}\text{Xe}$  peut expliquer l'émission d'un photon  $K\alpha\text{-X}$ . Ainsi,  $P_{K\alpha\text{-X/K-CE}}(^{131m}\text{Xe})$  vaut 44,2 %.

Si on note  $C_{net}$  le comptage net dans la ROI de coïncidences du  $^{131m}\text{Xe}$ ,  $T_{acq}$  le temps d'acquisition de la mesure et  $\epsilon_{ROI}$  le rendement de détection en coïncidence des événements considérés alors l'activité en  $^{131m}\text{Xe}$  (au début de la mesure) s'écrit (cf. équation 3.2) :

$$A(^{131m}\text{Xe}) = c \frac{C_{net}}{T_{acq} \epsilon_{K\alpha\text{-X/K-CE}}(^{131m}\text{Xe})}, \quad (3.5)$$

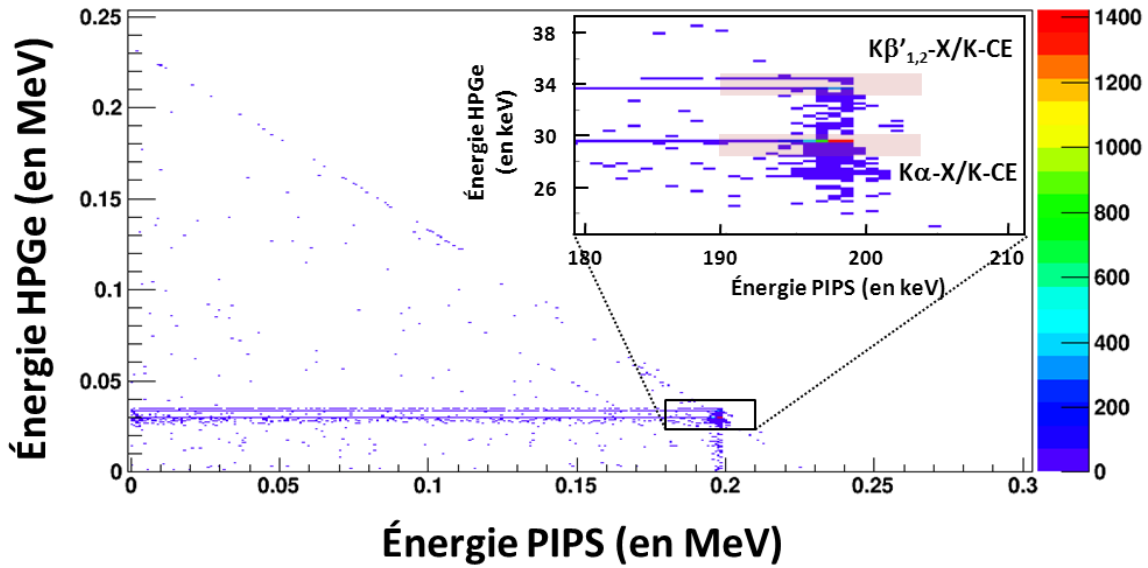
où  $\epsilon_{K\alpha-X/K-CE}^{(^{131m}\text{Xe})}$  est le rendement de détection en coïncidences du  $^{131m}\text{Xe}$  pour la décroissance  $K\alpha-X/K-CE$  considérée et  $c$  est un facteur de correction. Dans le cas du  $^{131m}\text{Xe}$ , seule la décroissance pendant la mesure est à prendre en compte, ainsi  $c$  est égal à :

$$c = \frac{T_{acq} \lambda_{^{131m}\text{Xe}}}{1 - e^{-T_{acq} \lambda_{^{131m}\text{Xe}}}}. \quad (3.6)$$

### Le $^{133m}\text{Xe}$

Le schéma de décroissance du  $^{133m}\text{Xe}$  est donné en figure 3.2. Les quatre émissions d'électron de conversion pour cet isotope du xénon sont (cf. Chisté *et al.* (2014)) :

- les EC-K, émis à 198,7 keV avec une probabilité de 63,5 % ;
- les EC-L, émis entre 227,8 et 228,4 keV avec une probabilité de 20,7 % ;
- les EC-M, émis entre 232,1 et 232,5 keV avec une probabilité de 4,6 % ;
- et les EC-N, émis entre 233,0 et 233,2 keV avec une probabilité de 0,9 %.



**Figure 3.4** – Spectre simulé de coïncidences photon/électron pour la mesure d'un étalon de  $^{133m}\text{Xe}$  par la PIPSBox et PORTHOS. Les ROI des événements de coïncidences K-X/K-CE sont mises en avant dans l'encart en haut à droite de la figure.

Comme pour le  $^{131m}\text{Xe}$ , seuls les événements de coïncidences K-X/K-CE sont observables pour le  $^{133m}\text{Xe}$  en coïncidences photon/électron en utilisant le détecteur PIPSBox couplé à un ou deux détecteurs HPGe, comme illustré par la figure 3.4. Les groupes d'émissions de photons K-X, sont les mêmes que pour le  $^{131m}\text{Xe}$ . Seule leur probabilité d'émission change :

- le groupe  $K\alpha-X$  a une probabilité d'émission de 45,7 % ,
- le groupe  $K\beta'_1-X$  a une probabilité d'émission de 8,6 % ,

- le groupe  $K\beta'_2$ -X a une probabilité d'émission de 2,0 %.

La quantification du  $^{133m}\text{Xe}$  s'effectue sur la coïncidence  $K\alpha$ -X/ $K$ -CE. La probabilité d'occurrence de cet enchainement s'écrit (en utilisant des notations similaires à celles de l'équation 3.3) :

$$P_{K\alpha\text{-X}/K\text{-CE}}(^{133m}\text{Xe}) = P_{K\alpha\text{-X}}(^{133m}\text{Xe})P_{K\text{-CE}|K\alpha\text{-X}}(^{133m}\text{Xe}). \quad (3.7)$$

Et comme pour le  $^{131m}\text{Xe}$ , le rapport d'embranchement vaut 1 et cette probabilité se simplifie directement en :

$$P_{K\alpha\text{-X}/K\text{-CE}}(^{133m}\text{Xe}) = P_{K\alpha\text{-X}}(^{133m}\text{Xe}), \quad (3.8)$$

Ainsi,  $P_{K\alpha\text{-X}/K\text{-CE}}(^{133m}\text{Xe})$  vaut 45,7 %. Et l'activité en  $^{133m}\text{Xe}$  se calcule de la manière suivante :

$$A(^{133m}\text{Xe}) = c \frac{C_{net}}{T_{acq} \epsilon_{K\alpha\text{-X}/K\text{-CE}}(^{133m}\text{Xe})}, \quad (3.9)$$

où  $\epsilon_{K\alpha\text{-X}/K\text{-CE}}(^{133m}\text{Xe})$  est le rendement de coïncidence du  $^{133m}\text{Xe}$  pour la décroissance  $K\alpha$ -X/ $K$ -CE considérée et  $c$  est un facteur de correction. Dans le cas du  $^{133m}\text{Xe}$ , seule la décroissance pendant la mesure est à prendre en compte, d'où :

$$c = \frac{T_{acq} \lambda_{^{133m}\text{Xe}}}{1 - e^{-T_{acq} \lambda_{^{133m}\text{Xe}}}}. \quad (3.10)$$

## Le $^{133}\text{Xe}$

Le schéma de décroissance du  $^{133}\text{Xe}$  est donné au centre de la figure 3.2. Le  $^{133}\text{Xe}$  a trois émissions  $\beta^-$ , mais celle dont la probabilité est inférieure à 0,1 % sera négligée par la suite. Ainsi, trois transitions entre niveaux excités du  $^{133}\text{Cs}$  sont à considérer (cf. Chisté *et al.* (2014)) :

- la transition  $2 \rightarrow 1$ , d'énergie 79,6 keV et de probabilité ( $\gamma$ +EC) de 0,78 %.
- la transition  $2 \rightarrow 0$ , d'énergie 160,6 keV et de probabilité ( $\gamma$ +EC) de 0,09 %. Cette transition est négligeable.
- la transition  $1 \rightarrow 0$ , d'énergie 81,0 keV et de probabilité ( $\gamma$ +EC) de 99,9 %.

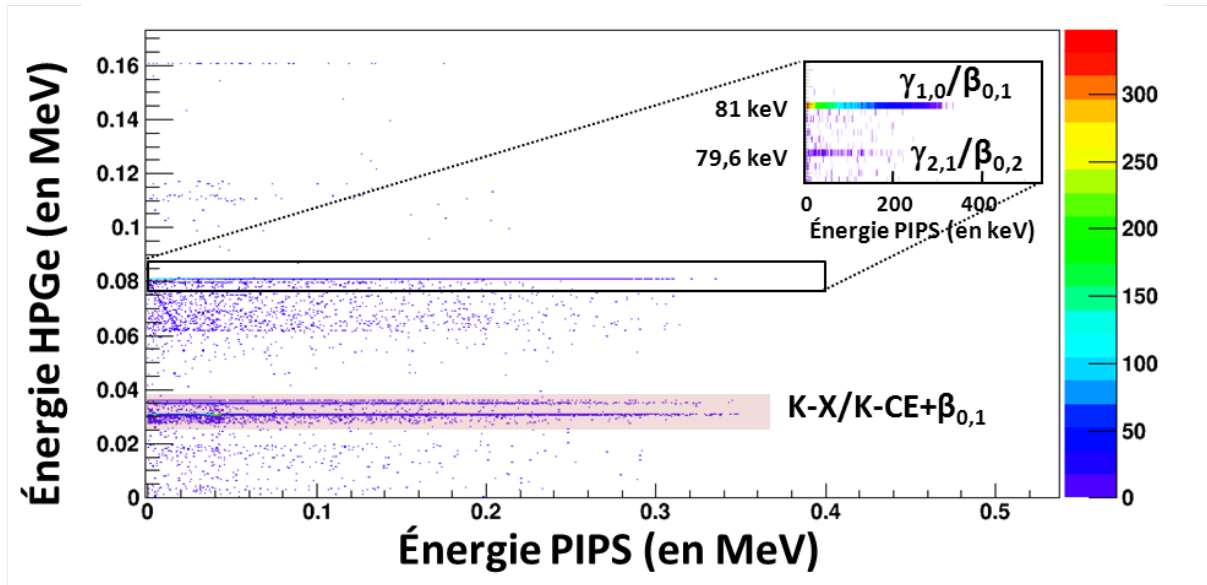
Au final, deux transitions sont à considérer ( $2 \rightarrow 1$  et  $1 \rightarrow 0$ ). Chacune de ces transitions : (i) sont en coïncidence avec un électron  $\beta^-$  ; et (ii) émettent soit un photon  $\gamma$  soit un électron de conversion simultanément avec le photon X (ou l'électron Auger) associé. Comme pour les deux radioxénons précédents, seuls les photons K-X du  $^{133}\text{Xe}$  sont observables. Ainsi seules les conversions électroniques de couche K des transitions  $2 \rightarrow 1$  et  $1 \rightarrow 0$  sont exploitables. Celles-ci sont :

- le  $K\text{-CE}_{2,1}$  à 43,6 keV, avec une probabilité de 0,4 %.

- le  $K\text{-CE}_{1,0}$  à 45,0 keV, avec une probabilité de 52,9 %.

Ces deux émissions de K-CE sont d'énergies trop proches ( $E_{K\text{-CE}_{1,0}} - E_{K\text{-CE}_{2,1}} = 1,4$  keV) par rapport à la résolution énergétique des détecteurs PIPS (typiquement 11 keV). Ces deux émissions sont regroupées au sein d'une émission d'énergie moyenne de 45,0 keV à 53,3 %. Concernant les émissions K-X du  $^{133}\text{Xe}$ , elles sont regroupées en trois groupes :

- le groupe  $K\alpha\text{-X}$  :  $K\alpha_2$  (30,6 keV) et  $K\alpha_1$  (31,0 keV) avec une probabilité d'émission de 38,5 %. L'énergie moyenne pondérée de ce groupe est de 30,9 keV.
- le groupe  $K\beta'_1\text{-X}$  :  $K\beta_3$  (34,9 keV),  $K\beta_1$  (35,0 keV) et  $K\beta'_5$  (35,3 keV) avec une probabilité d'émission de 7,3 %. L'énergie moyenne pondérée de ce groupe est de 35,1 keV.
- le groupe  $K\beta'_2\text{-X}$  :  $K\beta_2$  (35,8 keV),  $K\beta_4$  (35,9 keV) et  $K\alpha_{2,3}$  (36,0 keV) avec une probabilité d'émission de 1,8 %. L'énergie moyenne pondérée de ce groupe est de 35,9 keV.



**Figure 3.5** – Spectre simulé de coïncidences photon/électron pour la mesure d'un étalon de  $^{133}\text{Xe}$  par le détecteur PIPSBox et PORTHOS. Les  $ROI$  des événements de coïncidences  $\gamma/\beta^-$  sont mises en avant dans l'encart en haut à droite de la figure.

On en retient que les  $ROI$  de coïncidences ( $\gamma/\beta$  ou K-X/électrons) suivantes sont d'importance particulière pour la mesure du  $^{133}\text{Xe}$  (cf. figure 3.5) :

- La coïncidence  $\gamma_{1,0}/\beta_{0,1}^-$  (avec  $E_{max} = 346,4$  keV), de probabilité :

$$P_{\gamma_{1,0}/\beta_{0,1}^-}(^{133}\text{Xe}) = P_{\beta_{0,1}^-}(^{133}\text{Xe}) \times P_{\gamma_{1,0}|\beta_{0,1}^-}(^{133}\text{Xe}), \quad (3.11)$$

où dans ce cas le rapport d'embranchement s'écrit :

$$P_{\gamma_{1,0}|\beta_{0,1}^-}(^{133}\text{Xe}) = \frac{P_{\gamma_{1,0}}(^{133}\text{Xe})}{P_{\gamma_{1,0}}(^{133}\text{Xe}) + P_{\text{CE}(\gamma_{1,0})}(^{133}\text{Xe})}, \quad (3.12)$$

où  $P_{\text{CE}(\gamma_{1,0})}({}^{133}\text{Xe})$  est la probabilité de conversion électronique de  $\gamma_{1,0}$ . Et ainsi,  $P_{\gamma_{1,0}/\beta_{0,1}^-}({}^{133}\text{Xe}) = 36,8 \%$ .

- La coïncidence  $\gamma_{2,1}/\beta_{0,2}^-$  (avec  $E_{\text{max}} = 266,8 \text{ keV}$ ), de probabilité :

$$P_{\gamma_{2,1}/\beta_{0,2}^-}({}^{133}\text{Xe}) = P_{\beta_{0,2}^-}({}^{133}\text{Xe}) \times P_{\gamma_{2,1}|\beta_{0,2}^-}({}^{133}\text{Xe}), \quad (3.13)$$

où dans ce cas le rapport d'embranchement s'écrit :

$$P_{\gamma_{2,1}|\beta_{0,2}^-}({}^{133}\text{Xe}) = \frac{P_{\gamma_{2,1}}({}^{133}\text{Xe})}{P_{\gamma_{2,0}}({}^{133}\text{Xe}) + P_{\text{CE}(\gamma_{2,0})}({}^{133}\text{Xe}) + P_{\gamma_{2,1}}({}^{133}\text{Xe}) + P_{\text{CE}(\gamma_{2,1})}({}^{133}\text{Xe})}. \quad (3.14)$$

Ce rapport d'embranchement vaut 0,34 et  $P_{\gamma_{2,0}/\beta_{0,2}^-}({}^{133}\text{Xe}) = 0,3 \%$ .

- La coïncidence  $\text{K}\alpha\text{-X}/\text{K-CE}(\gamma_{1,0})$ , de probabilité :

$$P_{\text{K}\alpha\text{-X}/\text{K-CE}(\gamma_{1,0})}({}^{133}\text{Xe}) = P_{\text{K}\alpha\text{-X}}({}^{133}\text{Xe}) \times P_{\text{K-CE}(\gamma_{1,0})|\text{K}\alpha\text{-X}}({}^{133}\text{Xe}), \quad (3.15)$$

où dans ce cas le rapport d'embranchement s'écrit :

$$P_{\text{K-CE}(\gamma_{1,0})|\text{K}\alpha\text{-X}}({}^{133}\text{Xe}) = \frac{P_{\text{K-CE}(\gamma_{1,0})}}{P_{\text{K-CE}(\gamma_{1,0})} + P_{\text{K-CE}(\gamma_{2,1})}} \quad (3.16)$$

car les conversions internes des autres transitions sont négligées. Et dans ce cas, le rapport d'embranchement vaut 0,99 et  $P_{\text{K-CE}(\gamma_{1,0})/\text{K}\alpha\text{-X}}({}^{133}\text{Xe}) = 38,2 \%$ .

Mais la coïncidence  $\gamma_{2,1}/\beta_{0,2}^-$  ne permet pas la mesure de trace de  ${}^{133}\text{Xe}$ . En effet, elle a une faible probabilité d'occurrence et sa région d'intérêt est interférée avec les descendants du radon. Le  ${}^{214}\text{Bi}$  a une émission  $\text{K}\alpha_1\text{-X}$  à 79,29 keV (précédée d'une émission  $\beta^-$ ), et la résolution en énergie des détecteurs HPGe ne permet pas de distinguer correctement une émission à 79,29 keV d'une émission à 79,61 keV. Les échantillons environnementaux de radionucléides peuvent contenir une quantité non négligeable de  ${}^{214}\text{Bi}$ .

La coïncidence  $\text{K}\alpha\text{-X}/\text{K-CE}$  n'est pas non plus optimale pour la mesure de traces de  ${}^{133}\text{Xe}$ . En effet :

- l'électron de conversion est émis simultanément avec l'électron  $\beta^-$ . Ainsi, il y a un risque de sommation d'électrons dans le détecteur PIPS : le détecteur mesure l'énergie totale déposée par ces deux électrons.
- le  ${}^{135}\text{Xe}$  émet des électrons  $\beta^-$  qui peuvent interférer avec cette ROI.
- comme illustré dans le chapitre précédent (cf. figure 2.23), le rendement de détection des électrons de 45 keV est réduit et est fortement dépendant de la composition du gaz.

Au final c'est la coïncidence  $\gamma_{1,0}/\beta_{0,1}^-$  qui est la plus adaptée pour la quantification du  ${}^{133}\text{Xe}$ .



Le  $^{133m}\text{Xe}$  se désintègre en  $^{133}\text{Xe}$ , l'équation reliant le comptage  $C_{net}$  à l'activité en  $^{133}\text{Xe}$  ( $A(^{133}\text{Xe})$ ) s'exprime donc différemment des équations 3.5 et 3.9. La décroissance de  $^{133}\text{I}$  n'est pas à prendre en compte car on parle ici d'un étalon de radioxénon ou d'échantillon environnemental de gaz noble. À tout instant  $t$  de la mesure, en notant  $\lambda_{^{133}\text{Xe}}$  et  $\lambda_{^{133m}\text{Xe}}$  les constantes de désintégration du  $^{133}\text{Xe}$  et du  $^{133m}\text{Xe}$ , on a :

$$\frac{dN_{^{133}\text{Xe}}}{dt}(t) = -\lambda_{^{133}\text{Xe}}N_{^{133}\text{Xe}}(t) + \lambda_{^{133m}\text{Xe}}N_{^{133m}\text{Xe}}(t) ; \quad (3.17)$$

où  $N_{^{133}\text{Xe}}(t)$  et  $N_{^{133m}\text{Xe}}(t)$  sont les nombres d'atomes de  $^{133}\text{Xe}$  et  $^{133m}\text{Xe}$  dans l'échantillon à l'instant  $t$ . Sachant que :

$$\lambda_{^{133m}\text{Xe}}N_{^{133m}\text{Xe}}(t) = A(^{133m}\text{Xe}, t=0)e^{-\lambda_{^{133m}\text{Xe}}t}, \quad (3.18)$$

l'équation 3.17 a pour solution :

$$\begin{aligned} A(^{133}\text{Xe}, t) &= A(^{133}\text{Xe}, t=0)e^{-\lambda_{^{133}\text{Xe}}t} \\ &+ \frac{\lambda_{^{133}\text{Xe}}}{\lambda_{^{133}\text{Xe}} - \lambda_{^{133m}\text{Xe}}} A(^{133m}\text{Xe}, t=0) \left( e^{-\lambda_{^{133m}\text{Xe}}t} - e^{-\lambda_{^{133}\text{Xe}}t} \right) ; \end{aligned} \quad (3.19)$$

or, par définition :

$$A(^{133}\text{Xe}, t) = -\frac{dN_{^{133}\text{Xe}}}{dt}. \quad (3.20)$$

De plus, durant un court instant  $dt$  de la mesure, le comptage net dans la *ROI* caractéristique du  $^{133}\text{Xe}$  choisie est relié au nombre d'atomes de  $^{133}\text{Xe}$  ayant décru par la relation (cf. équation 3.2) :

$$dC_{net}dt = -\epsilon_{\gamma_{1,0}/\beta_{0,1}^-}(^{133}\text{Xe})dN_{^{133}\text{Xe}}dt, \quad (3.21)$$

où  $\epsilon_{\gamma_{1,0}/\beta_{0,1}^-}(^{133}\text{Xe})$  est le rendement de coïncidences (au sens de Schroettner *et al.* (2010)) du  $^{133}\text{Xe}$  pour la décroissance  $\gamma_{1,0}/\beta_{0,1}^-$  considérée.

Ainsi, en combinant les équations 3.19, 3.20 et 3.21, on obtient qu'à tout instant  $t$  de la mesure :

$$\begin{aligned} \frac{1}{\epsilon_{\gamma_{1,0}/\beta_{0,1}^-}(^{133}\text{Xe})} \frac{dC_{net}}{dt} &= A(^{133}\text{Xe}, t=0)e^{-\lambda_{^{133}\text{Xe}}t} \\ &+ \frac{\lambda_{^{133}\text{Xe}}}{\lambda_{^{133}\text{Xe}} - \lambda_{^{133m}\text{Xe}}} A(^{133m}\text{Xe}, t=0) \left( e^{-\lambda_{^{133m}\text{Xe}}t} - e^{-\lambda_{^{133}\text{Xe}}t} \right). \end{aligned} \quad (3.22)$$

En intégrant entre  $t = 0$  et  $t = T_{acq}$  l'équation 3.22, on obtient :

$$\begin{aligned} \frac{C_{net}}{T_{acq}\epsilon_{\gamma_{1,0}/\beta_{0,1}^-}(^{133}\text{Xe})} &= A(^{133}\text{Xe}, t=0) \frac{1 - e^{-\lambda_{^{133}\text{Xe}}T_{acq}}}{\lambda_{^{133}\text{Xe}}T_{acq}} \\ &+ \frac{\lambda_{^{133}\text{Xe}}}{\lambda_{^{133}\text{Xe}} - \lambda_{^{133m}\text{Xe}}} A(^{133m}\text{Xe}, t=0) \left( \frac{1 - e^{-\lambda_{^{133m}\text{Xe}}T_{acq}}}{\lambda_{^{133m}\text{Xe}}T_{acq}} - \frac{1 - e^{-\lambda_{^{133}\text{Xe}}T_{acq}}}{\lambda_{^{133}\text{Xe}}T_{acq}} \right). \end{aligned} \quad (3.23)$$

Avec ces notations, l'activité en  $^{133}\text{Xe}$  recherchée ( $A(^{133}\text{Xe})$ ) est  $A(^{133}\text{Xe}, t = 0)$ . Au final, en réécrivant l'équation 3.23, il vient que :

$$A(^{133}\text{Xe}) = c_d \left( \frac{C_{net}}{T_{acq} \epsilon_{\gamma_{1,0}/\beta_{0,1}^-} (^{133}\text{Xe})} - c'_d A(^{133m}\text{Xe}) \right), \quad (3.24)$$

où  $A(^{133m}\text{Xe})$  est l'activité en  $^{133m}\text{Xe}$  au début de la mesure,  $c_d$  est le facteur de correction de la décroissance durant la mesure du  $^{133}\text{Xe}$  :

$$c_d = \frac{\lambda_{133\text{Xe}} T_{acq}}{1 - e^{-\lambda_{133\text{Xe}} T_{acq}}}, \quad (3.25)$$

Et  $c'_d$  est un facteur de décroissance croisée du  $^{133m}\text{Xe}$  et du  $^{133}\text{Xe}$  :

$$c'_d = \frac{\lambda_{133\text{Xe}}}{\lambda_{133\text{Xe}} - \lambda_{133m\text{Xe}}} \left( \frac{1 - e^{-\lambda_{133m\text{Xe}} T_{acq}}}{\lambda_{133m\text{Xe}} T_{acq}} - \frac{1 - e^{-\lambda_{133\text{Xe}} T_{acq}}}{\lambda_{133\text{Xe}} T_{acq}} \right). \quad (3.26)$$

## Le $^{135}\text{Xe}$

Le schéma de décroissance simplifié du  $^{135}\text{Xe}$  est donné sur la partie droite de la figure 3.2. Seules les désintégrations par émissions  $\beta^-$  vers les trois états excités les plus peuplés (notés 1, 2 et 3 sur la figure 3.2) du  $^{135}\text{Cs}$  sont considérées. Ces trois émissions  $\beta^-$  sont (cf. Axelsson *et al.* (2012)) :

- l'émission  $\beta_{0,3}^-$ , avec une probabilité d'occurrence de 3,1 % et une  $E_{max}$  de 557 keV ;
- l'émission  $\beta_{0,2}^-$ , avec une probabilité d'occurrence de 0,6 % et une  $E_{max}$  de 757 keV ;
- et enfin l'émission  $\beta_{0,1}^-$ , avec une probabilité d'occurrence de 96 % et une  $E_{max}$  de 905 keV.

Les transitions entre niveaux excités du  $^{135}\text{Cs}$  à considérer sont principalement la transition 3→0 d'énergie 608,2 keV et de probabilité (CE+ $\gamma$ ) de 2,3 % ; et la transition 1→0 d'énergie 249,8 keV et de probabilité (CE+ $\gamma$ ) de 96,6 %. Comme pour le  $^{133}\text{Xe}$ , les périodes des états du  $^{135}\text{Cs}$  étant extrêmement courts (d'une durée au moins 10 fois inférieure à la fenêtre de coïncidence, i.e. 1  $\mu\text{s}$ ), ces transitions ont lieu simultanément avec l'émission de l'électron  $\beta^-$  associée. Elles donnent lieu à l'émission soit d'un photon  $\gamma$ , soit à une conversion interne.

De toutes les émissions d'électrons de conversion du  $^{135}\text{Xe}$ , seul le K-CE associé à la transition 1→0 a une probabilité d'occurrence supérieure à 1 %. Néanmoins, son émission est noyée par l'émission  $\beta_{0,1}^-$  simultanée. Ainsi, deux événements de coïncidences peuvent servir à la détection et à la quantification du  $^{135}\text{Xe}$  :

- la coïncidence  $\gamma_{1,0}/\beta_{0,1}^-$  (photons  $\gamma$  dont l'énergie est 249,8 keV en coïncidence avec des électrons  $\beta^-$  dont l'énergie maximum est 905 keV), dont la probabilité d'émission est :

$$P_{\gamma_{1,0}/\beta_{0,1}^-}({}^{135}\text{Xe}) = P_{\beta_{0,1}^-}({}^{135}\text{Xe}) \times P_{\gamma_{1,0}|\beta_{0,1}^-}({}^{135}\text{Xe}), \quad (3.27)$$

Or, le rapport d'embranchement vaut 0,94 et ainsi  $P_{\gamma_{1,0}/\beta_{0,1}^-}({}^{135}\text{Xe}) = 90,3 \%$ .

- la coïncidence  $\gamma_{3,0}/\beta_{0,3}^-$  (photons  $\gamma$  de 608,2 keV d'énergie en coïncidence avec des électrons  $\beta^-$  dont l'énergie maximale est 557 keV), avec la probabilité d'émission suivante :

$$P_{\gamma_{3,0}/\beta_{0,3}^-}({}^{135}\text{Xe}) = P_{\beta_{0,3}^-}({}^{135}\text{Xe}) \times P_{\gamma_{3,0}|\beta_{0,3}^-}({}^{135}\text{Xe}), \quad (3.28)$$

ou (sous son autre forme) :

$$P_{\gamma_{3,0}/\beta_{0,3}^-}({}^{135}\text{Xe}) = P_{\gamma_{3,0}}({}^{135}\text{Xe}) \times P_{\beta_{0,3}^-|\gamma_{3,0}}({}^{135}\text{Xe}), \quad (3.29)$$

dans ce cas, le rapport de branchement vaut 1, et  $P_{\gamma_{3,0}/\beta_{0,3}^-}({}^{135}\text{Xe}) = 2,9 \%$ .

Mais la coïncidence  $\gamma_{3,0}/\beta_{0,3}^-$  du  ${}^{135}\text{Xe}$  peut être interférée par la coïncidence  $\gamma_{1,0}/\beta^-$  du  ${}^{214}\text{Bi}$  (dans ce cas, plusieurs émissions  $\beta^-$  peuvent être détectées en coïncidence avec le photon  $\gamma_{1,0}$ ). En effet, l'émission  $\gamma_{1,0}$  à 609,3 keV du  ${}^{214}\text{Bi}$  est son émission la plus probable (avec une probabilité  $P_{\gamma_{1,0}} = 45,5 \%$ ), et la résolution en énergie d'un détecteur HPGe (de type BEGe5030P) à ces énergies est d'environ 1,2 keV. Les détecteurs au germanium du spectromètre GAMMA<sup>3</sup> ont donc une résolution en énergie insuffisante pour distinguer (sans dé-convolution) l'émission  $\gamma_{3,0}$  du  ${}^{135}\text{Xe}$  à 608,2 keV de l'émission  $\gamma_{1,0}$  à 609,3 keV du  ${}^{214}\text{Bi}$ .

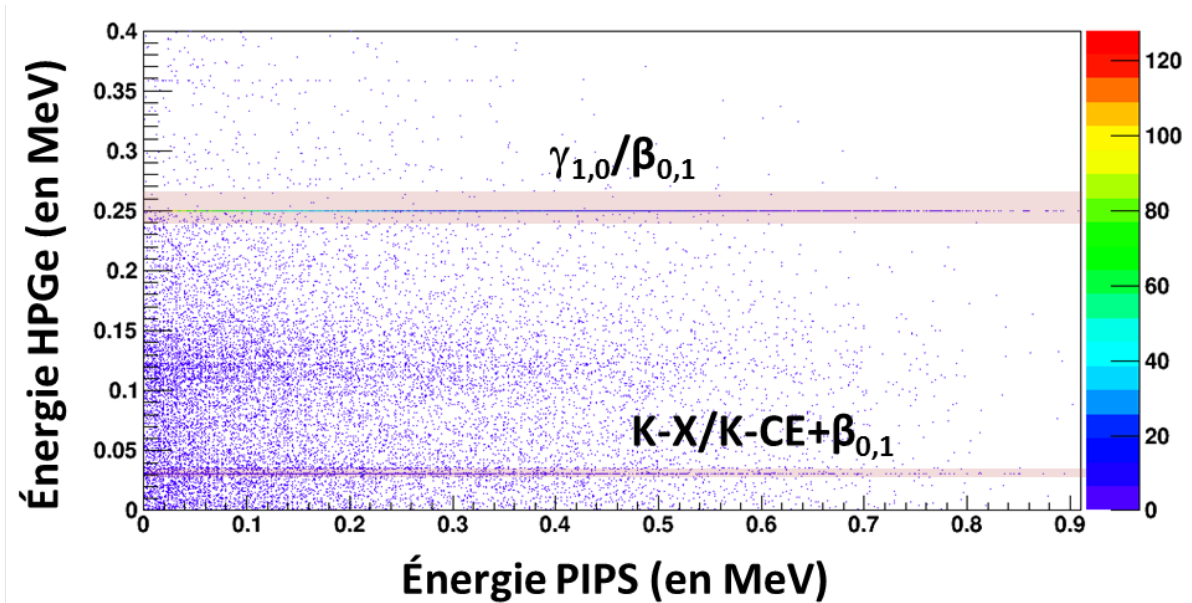


Figure 3.6 – Spectre simulé de coïncidences photon/électron correspondant à la mesure d'un étalon de  ${}^{135}\text{Xe}$  par le détecteur PIPSBox et PORTHOS.

Au final la quantification du  $^{135}\text{Xe}$  s'effectue à partir de la coïncidence  $\gamma_{1,0}/\beta_{0,1}^-$ , comme illustré en figure 3.6. Sur cette figure, les *ROI* des coïncidences  $\gamma_{1,0}/\beta_{0,1}^-$  et  $\text{K-X}/\beta_{0,1}^- + \text{K-CE}(\gamma_{0,1})$  sont illustrées. Mais seule la coïncidence  $\gamma_{1,0}/\beta_{0,1}^-$  permet la détection et la mesure du  $^{135}\text{Xe}$  dans le cas d'échantillons environnementaux. Avec les notations usuelles :

$$A(^{135}\text{Xe}) = c_d \frac{C_{net}}{T_{acq} \epsilon_{\gamma_{1,0}/\beta_{0,1}^-} (^{135}\text{Xe})} ; \quad (3.30)$$

où  $c_d$  est la correction de la décroissance de l'activité pendant la mesure. La période du  $^{135}\text{Xe}$  étant particulièrement courte comparée aux autres radionucléides et considérant une durée d'acquisition de 24h, la correction de décroissance de l'activité n'est pas négligeable. Cette dernière est donnée par :

$$c_d = \frac{\ln(2) T_{acq} / T_{1/2} (^{135}\text{Xe})}{1 - e^{\ln(2) T_{acq} / T_{1/2} (^{135}\text{Xe})}} \quad (3.31)$$

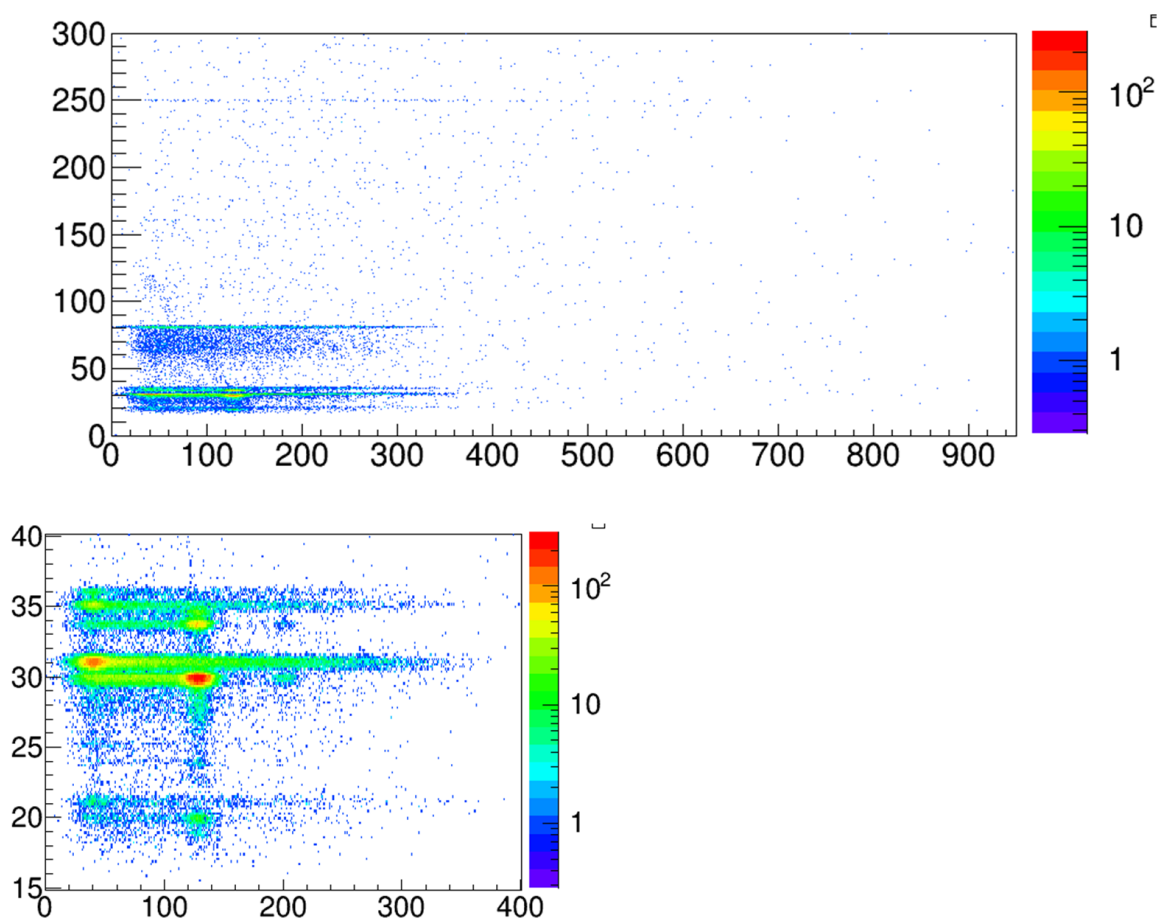
### 3.2.3 Détermination des rendements de détection

Radionucléides	Coïncidence	ROI (en keV)	Rendement de détection (en s <sup>-1</sup> /kBq)		
			Expérimental	Simulation	Schroettner <i>et al.</i> (2010)
$^{131m}\text{Xe}$	$\text{K}\alpha\text{-X}/\text{K-CE}$	[28-30,4]/ [120-140]	34,4 (10 %)	35,1 (10 %)	7,4
$^{133m}\text{Xe}$	$\text{K}\alpha\text{-X}/\text{K-CE}$	[28-30,4]/ [190-210]	34,0 (13 %)	36,1 (10 %)	10,2
$^{133}\text{Xe}$	$\gamma_{1,0}/\beta_{0,1}^-$	[80-82]/ [55-400]	37,7 (8 %)	39,1* (10 %)	13,4**
$^{135}\text{Xe}$	$\gamma_{1,0}/\beta_{0,1}^-$	[248,5-251,5]/ [55-950]	91,1 (9 %)	84,6* (10 %)	23,6**

**Tableau 3.1** – Rendements de détection en coïncidences mesurés et simulés des radionucléides, en utilisant une configuration de mesure PORTHOS/PIPSBox. \*Les rendements de coïncidences  $\gamma/\beta$  sont très sensibles à la coupure basse énergie des détecteurs PIPS, ce qui peut expliquer l'écart observé entre la mesure expérimentale et la simulation. Les rendements de détection présentés dans le tableau 3.1 pour le détecteur développé par T. Schroettner (cf. Schroettner *et al.* (2010)) sont rappelés à titre de comparaison. \*\* : dans l'article Schroettner *et al.* (2010), il n'est pas fait mention d'une énergie de coupure, et les rendements en coïncidence  $\gamma/\beta$  sont donnés sur [0-400] keV (pour l'énergie électron du  $^{133}\text{Xe}$ ) et [0-950] keV (pour l'énergie électron du  $^{135}\text{Xe}$ ).

En résumé, la détection des  $^{131m}, ^{133m}\text{Xe}$  se fait par coïncidence  $\text{K}\alpha\text{-X}/\text{K-CE}$  et la détection des  $^{133}, ^{135}\text{Xe}$  se fait par coïncidence  $\gamma/\beta$ . Ceci est synthétisé en figure 3.7. Les *ROI* associées à la mesure en coïncidence photon/électron de chacun des radionucléides sont délimitée en rouge sur la figure. Les rendements de détection des radionucléides correspondant à ces voies de détection ont été obtenus par simulation Monte-Carlo et par mesure expérimentale d'étalons de radionucléide. Ils sont présentés dans le tableau 3.1.

La mesure présentée en figure 3.7 est celle d'un étalon contenant les quatre radionucléides. On observe ainsi que les *ROI* de coïncidences choisies pour la quantification des différents



**Figure 3.7** – Synthèse : mesure (sans veto cosmique) d'un étalon contenant les quatre radionucléides ( $1,72 \text{ Bq}$  de  $^{131m}\text{Xe}$ ,  $1,75 \text{ Bq}$  de  $^{133}\text{Xe}$ ,  $62 \text{ mBq}$  de  $^{133m}\text{Xe}$  et  $27 \text{ mBq}$  de  $^{135}\text{Xe}$ ). En haut : spectre de coïncidence photon/électron. En bas à gauche : zoom sur la région  $15\text{--}40 \text{ keV}$  photon et  $0\text{--}400 \text{ keV}$  électron. En bas à droite : projection sur l'axe photon du spectre de coïncidence photon/électron (entre  $55$  et  $950 \text{ keV}$ ). Les *ROI* utilisées pour la mesure de chacun des radionucléides sont entourées en rouge. D'autres *ROI* sont aussi mises en avant sur le spectre en bas à gauche de la figure : les *ROI* de coïncidence  $K\beta\text{-X}/K\text{-CE}$  des  $^{131m,133m}\text{Xe}$  (cercles noirs) et les *ROI* de coïncidence  $K\alpha$  ou  $\beta\text{-X}/K\text{-CE}+\beta$  des  $^{133,135}\text{Xe}$ . Sur le spectre en bas à droite de la figure, les pics d'émission photon des  $^{133,135}\text{Xe}$  sont clairement visibles.

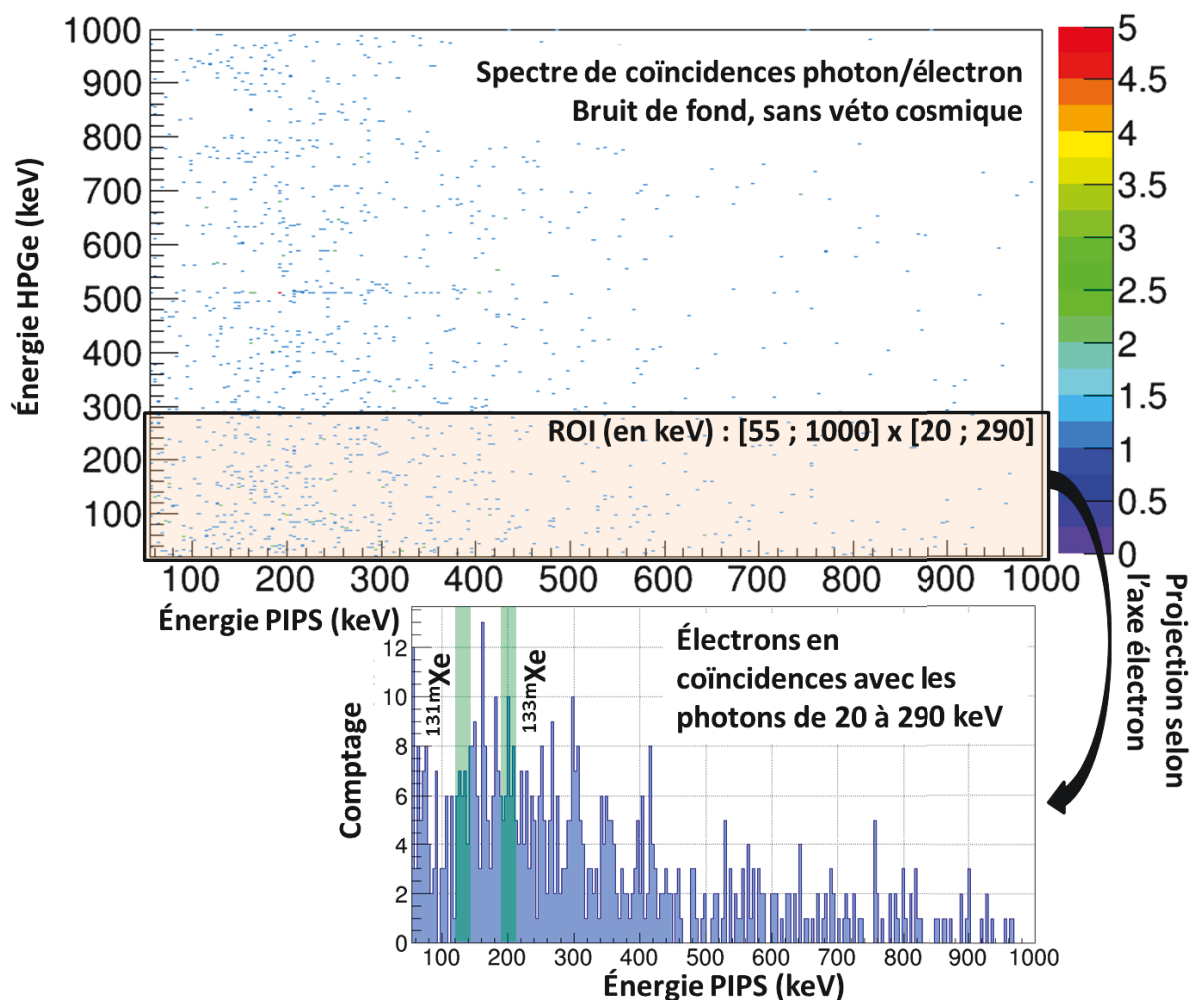
radionucléides sont clairement distinctes les unes des autres. Ceci permet donc de minimiser les interférences entre radionucléides et ainsi de garantir la fiabilité de ces mesures. Les autres *ROI* caractéristiques des radionucléides observées sur la figure (*ROI* entourées en noir ou en pointillé) ne sont pas utilisées car elles ne sont soit : (i) pas assez probables ou (ii) soit trop interférées.

Les résultats fournis dans le tableau 3.1 montrent un bon accord entre les rendements de détections simulés ou mesurés expérimentalement. Et ils montrent aussi le gain en rendement apporté par l'utilisation (pour la mesure des électrons) du détecteur PIPS-

Box comparé à un unique détecteur au silicium (de petite surface), tel qu'utilisé dans Schroettner *et al.* (2010).

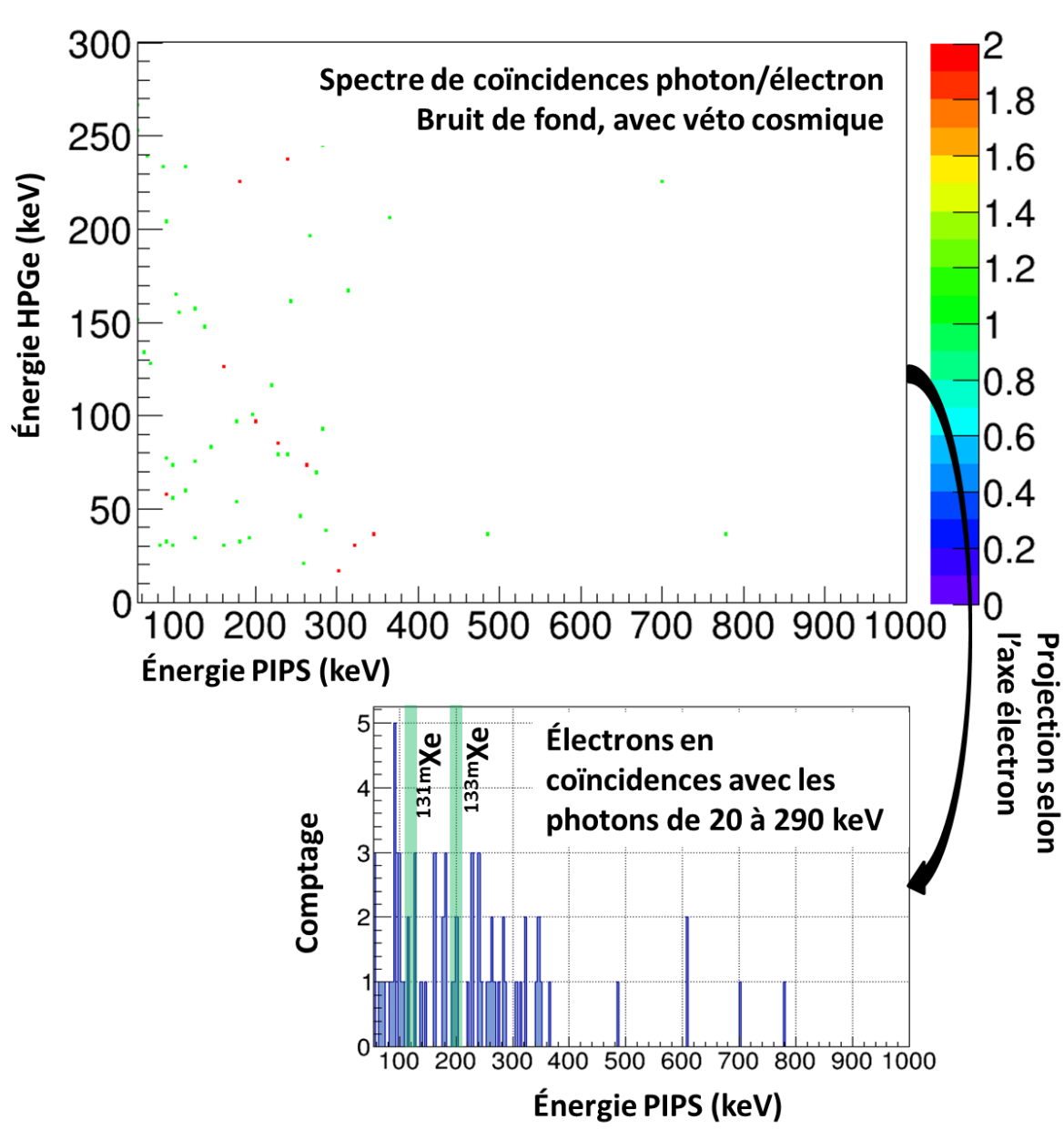
### 3.2.4 Estimation du bruit de fond

Bruit de fond et *AMD* des radionucléides



**Figure 3.8** – Spectre de coïncidences photon/électron d’une mesure de bruit de fond de 2,04 jours en configuration PORTHOS/PIPSBox sans veto cosmique. Le spectre projeté sur l’axe des énergies électrons des événements dont l’énergie photon est entre 20 et 300 keV est donné sur la partie inférieure de la figure. Sur ce spectre projeté, les *ROI* électron des  $^{131m},^{133m}\text{Xe}$  sont en vert. Ces spectres ont été affichés en 256 bins pour la voie PIPS et 512 bins pour la voie HPGe.

Après une mesure d’échantillon ou d’un étalon, le détecteur PIPSBox est vidé du gaz qu’il contient, et mis sous vide pendant 24h. Le spectre de bruit de fond photon/électron est ensuite mesuré pendant 2,04 jours en plaçant le détecteur PIPSBox sur le détecteur PORTHOS. Les spectres correspondants sont donnés sur les figures 3.8 et 3.9. Le taux de comptage intégral (sur le spectre de coïncidence entre 55 et 1000 keV d’énergie électron et 20 et 1000 keV d’énergie photon) est de  $28,5 \text{ h}^{-1}$  sans utilisation du veto cosmique, et



**Figure 3.9** – Zoom sur l’axe photon (entre 0 et 300 keV) d’un spectre de coïncidence photon/électron d’une mesure de bruit de fond de 2,04 jours en configuration PORTHOS/PIPSBox avec véto cosmique. Le spectre projeté sur l’axe des énergies électrons des événements dont l’énergie photon est entre 20 et 300 keV est donné sur la partie inférieure de la figure. Sur ce spectre projeté, les *ROI* électron des  $^{131m}, ^{133m}\text{Xe}$  sont en vert. Ces spectre ont été volontairement affichés en 256 bins pour la voie PIPS et 512 bins pour la voie HPGe.

descend à  $2,18 \text{ h}^{-1}$  en utilisant le véto cosmique.

Ces taux de comptage sont très faibles. Parce que les événements semblent répartis de manière aléatoire sur l’ensemble du spectre, la mesure du strict comptage dans une *ROI* donnée n’est pas représentatif. Les comptages dans la *ROI* de chacun des radionucléides ont été obtenus d’une façon détournée :

- comme illustré en figure 3.8 ou 3.9, le spectre des événements de coïncidence photon/électron a été projeté sur l'axe électron ("Énergie PIPS" sur les figures), pour les événements dont l'énergie photon était comprise entre 20 et 290 keV.
- Dans ce spectre projeté, les comptages dans les *ROI* électrons des radionucléides ont été relevés (*i.e.* dans 120-140 keV pour le  $^{131m}\text{Xe}$ , 190-210 keV pour le  $^{133m}\text{Xe}$ , 55-400 keV pour le  $^{133}\text{Xe}$  et dans 55-950 keV pour le  $^{135}\text{Xe}$ , cf. tableau 3.1).
- ces comptages ont été normalisés par rapport à la largeur des *ROI* photons des radionucléides (2,4 keV pour les  $^{131m},^{133m}\text{Xe}$ , 2 keV pour le  $^{133}\text{Xe}$  et 3 keV pour le  $^{135}\text{Xe}$ , cf. tableau 3.1).

Les résultats obtenus pour les comptages de bruit de fond avec ou sans le veto cosmique sont donnés dans le tableau 3.2.

Radionucléide	ROI (en keV)	Taux de comptage moyen de bruit de fond en $\text{s}^{-1}$	
		Sans veto cosmique	Avec veto cosmique
$^{131m}\text{Xe}$	[28-30,4]/ [120-140]	$1,6 \cdot 10^{-6}$ (18 %)	$2,0 \cdot 10^{-7}$ (50 %)
$^{133m}\text{Xe}$	[28-30,4]/ [190-210]	$1,7 \cdot 10^{-6}$ (17 %)	$2,0 \cdot 10^{-7}$ (50 %)
$^{133}\text{Xe}$	[80-82]/ [55-400]	$1,8 \cdot 10^{-5}$ (5 %)	$2,6 \cdot 10^{-6}$ (13 %)
$^{135}\text{Xe}$	[248,5-251,5]/ [55-950]	$3,9 \cdot 10^{-5}$ (4 %)	$4,3 \cdot 10^{-6}$ (12 %)
intégral	[20-1000]/ [55-1000]	$7,92 \cdot 10^{-3}$ (3 %)	$6,07 \cdot 10^{-4}$ (10 %)

**Tableau 3.2** – Taux de comptage moyens (en  $\text{s}^{-1}$ ), dans les *ROI* des radionucléides, et intégraux, relevés pour une configuration de mesure PORTHOS/PIPSBox, avec ou sans l'utilisation du veto cosmique. Les taux de comptages *moyens* ont été calculés à partir des comptages relevés dans un spectre projeté (le spectre des électrons détectés en coïncidences avec les photons d'énergie comprise entre 20 et 290 keV). Les incertitudes types (à  $1\sigma$ ) sont données entre parenthèses. Les taux comptages moyens avec veto cosmique ont une incertitude élevée car le comptage mesuré correspondant est très faible (par exemple, 4 coups dans la *ROI* électron en 2,04 jours sur la plage d'énergie photon [20-290 keV] pour les xénon métastables).

Les *AMD* obtenues pour les différentes configurations de mesure des radionucléides envisageables sont données dans le tableau 3.3. Ce tableau montre que ces *AMD* sont extrêmement faibles puisque cela correspond au comptage de la désintégration d'environ 400 (pour le  $^{131m}\text{Xe}$ ) à 60 (pour le  $^{135}\text{Xe}$ ) noyaux. Au final, la mise en œuvre de coïncidences photon/électron permet de gagner un facteur 100 sur l'*AMD* du  $^{131m}\text{Xe}$ . Pour les autres radionucléides, les gains en *AMD* sont très bons mais sont moins prononcés. En particulier, l'émission  $\gamma$  du  $^{133m}\text{Xe}$  est moins convertie que celle du  $^{131m}\text{Xe}$  ce qui, pour ce radionucléide, explique cette différence. Les  $^{133},^{135}\text{Xe}$  sont détectés par coïncidences  $\gamma/\beta$ .



Radionucléide	Critère de Certification TICE	AMD (en mBq)			
		BEGe5030 (classique)	GAMMA <sup>3</sup> (cellule SPALAX)	PORTHOS/PIPSBox Sans veto	Avec veto
<sup>131m</sup> Xe*	5	94	26	0,38	0,26
<sup>133m</sup> Xe*	5	30	8,9	0,50	0,40
<sup>133</sup> Xe*	5	4,6	1,2	0,79	0,36
<sup>135</sup> Xe**	15	14	3,9	4,1	1,3

**Tableau 3.3** – Évolution du tableau 2.8 afin de prendre en compte les *AMD* des radioxénons obtenues lors de leur mesure par spectrométrie de coïncidence photon/électron. Pour ces mesures de coïncidences, les bruits de fond ont été calculés à partir des résultats du tableau 3.2. Les  $S_D$  et  $L_D$  correspondants ont été calculés dans le cas de la statistique de Poisson. \* : *AMD* calculée pour une mesure de 6 jours, \*\* : *AMD* calculée pour une mesure de 2 jours.

Dans ce cas le bruit de fond associé est fortement diminué, mais le rendement de détection est lui aussi diminué ce qui limite le gain en *AMD* pour ces deux radioxénons.

Afin de calculer le seuil de décision ou la limite de détection ( $S_D$  ou  $L_D$ ) d'un radionucléide  $X$  dans une *ROI* donnée, il faut pouvoir estimer l'intégralité du comptage dans cette *ROI* qui n'est pas directement imputable à  $X$ . Or dans le cas de la mesure en coïncidences photon/électron d'échantillon environnemental, le comptage dans la *ROI* d'un radioxénon a plusieurs origines. Il est généré :

- par ce radioxénon,
- par le bruit de fond (déterminé dans la section précédente et donné dans le tableau 3.2),
- et potentiellement par les interférences dues aux radionucléides éventuellement présents dans l'échantillon : les trois autres radioxénons, le <sup>214</sup>Bi et le <sup>214</sup>Pb.

Le bruit de fond étant très faible, la part du comptage provenant d'autres radionucléides est prépondérante dans la plupart des cas. Il faut donc nécessairement prendre en compte les interférences et les  $S_D$  et  $L_D$  des radioxénons quantifiés uniquement à partir d'une mesure de bruit de fond (tel que présentés dans le tableau 3.3) correspondent à des cas idéaux non réalistes. Afin, de déterminer celles-ci, la notion de bruit blanc de mesure est définie ci-dessous.

### Blanc de mesure

Dans la  $ROI_{RX_i}$  d'un radioxénon  $RX_i$  donné ( $i = 1,2,3,4$ ),  $C = C_{net} + B_{blanc}$  ; où le comptage  $B_{blanc}$  (appelé blanc de mesure) est imputable aux radionucléides présents dans l'échantillon (autres que  $RX_1$ ) et au bruit de fond (comptage noté  $B$  dans les chapitres précédents).

Dans ce contexte, on définit ici une mesure de bruit blanc de  $RX_i$  comme la mesure *fictive* d'un échantillon (pendant une durée  $T_{acq}$ ) dont : (i) l'activité en  $RX_i$  est nulle

( $A(RX_i) = 0$ ) ; et (ii) les activités des autres radionucléides ( $RX_{j \neq i} \neq 0$ ), du  $^{214}\text{Pb}$  et du  $^{214}\text{Bi}$  sont non nulles.

On notera alors :

$$B_{\text{blanc}}(RX_i) = B_{BDF}(ROI_{RX_i}) + B_{^{214}\text{Pb}}(ROI_{RX_i}) + B_{^{214}\text{Bi}}(ROI_{RX_i}) + \sum_{j \neq i} B_{RX_j}(ROI_{RX_i}) ; \quad (3.32)$$

où  $B_{BDF}(ROI_{RX_i})$  est le bruit de fond de mesure dans  $ROI_{RX_i}$ , et  $B_X(ROI_{RX_i})$  est le bruit blanc de mesure généré par le radionucléide  $X$  dans  $ROI_{RX_i}$ . Cette mesure de bruit blanc est *fictive* car il n'est pas possible de produire de tels échantillons.

Néanmoins il est possible d'estimer la contribution de chacun des radionucléides au  $B_{\text{blanc}}$  d'un radionucléide  $RX_i$ . En particulier :

- la composante  $B_{BDF}(ROI_{RX_i})$  est obtenue lors de la mesure du bruit présentée précédemment.
- la composante  $B_X(ROI_{RX_i})$  s'écrit de manière générale comme  $B_X(ROI_{RX_i}) = \epsilon_{ROI_{RX_i}}(X) N_d(X)$ , où  $\epsilon_{ROI_{RX_i}}(X)$  est le rendement de détection en coïncidences de  $X$  dans la région d'intérêt de  $RX_i$  et  $N_d(X)$  est le nombre de noyaux de  $X$  s'étant désintégrés durant la mesure.

Dans un premier temps, pour déterminer  $N_d(X)$  les filiations entre le  $^{133\text{m}}\text{Xe}$  et  $^{133}\text{Xe}$ , et entre le  $^{214}\text{Pb}$  et  $^{214}\text{Bi}$  seront négligées. Ainsi, pour tout radionucléide  $X$  :

$$N_d(X) = A(X) T_{\text{acq}} \frac{1 - \exp(-\lambda_X T_{\text{acq}})}{\lambda_X T_{\text{acq}}} . \quad (3.33)$$

Concernant le rendement de détection en coïncidence de  $X$  dans la  $ROI$  de  $RX_i$  (noté  $\epsilon_{ROI_{RX_i}}(X)$ ), plusieurs cas de figure sont à prendre en compte.  $X$  peut être détecté dans la  $ROI$  de  $RX_i$  lorsque : (i) le photon qu'il émet interagit par effet Compton avec le cristal de germanium, (ii) lorsque la résolution du germanium ne permet pas de séparer complètement la  $ROI(RX_i)$  d'un pic d'émission photon de  $X$ . Ainsi :

- on notera  $\epsilon_{r,ROI_{RX_i}}(X)$  le rendement de détection de  $X$  dans la  $ROI$  de  $RX_i$  si cette détection est due à la résolution insuffisante du détecteur au germanium.
- on notera  $\epsilon_{c,ROI_{RX_i}}(X)$  le rendement de détection de  $X$  dans la  $ROI$  de  $RX_i$  suite à des événements  $\gamma/\beta$ , lorsque le photon  $\gamma$  qu'il émet interagit par effet Compton avec le cristal de germanium. En effet, dans ce cas le photon peut ne déposer qu'une partie de son énergie dans le cristal, et en particulier déposer une énergie dans la région photon de la  $ROI$  de  $RX_i$ . Ces rendements sont déterminés par simulation Monte-Carlo.

Ainsi, pour chacun des radionucléides il est possible d'obtenir une valeur estimée de  $B_{\text{blanc}}$ . Et c'est à partir de cette estimation que peuvent être calculés les  $S_D$  et  $L_D$  du système de mesure étudié.

### Cas du $^{135}\text{Xe}$

La  $ROI$  du  $^{135}\text{Xe}$  correspond aux événements de coïncidence  $\gamma_{1,0}/\beta_{0,1}^-$ . Cette  $ROI$  comprend donc les photons détectés entre 248,5 et 251,5 keV en coïncidence avec les électrons

détectés entre 55 et 950 keV. Or toutes les émissions de photons des radionucléides autres que celui-ci sont d'énergies inférieures. Ainsi, pour le  $^{135}\text{Xe}$ ,  $\sum_{j \neq i} B_{RX_j}(ROI_{RX_i}) = 0$ . Et dans ce cas :

$$B_{blanc}(^{135}\text{Xe}) = B_{BDF}(ROI_{^{135}\text{Xe}}) + B_{^{214}\text{Pb}}(ROI_{^{135}\text{Xe}}) + B_{^{214}\text{Bi}}(ROI_{^{135}\text{Xe}}). \quad (3.34)$$

Ainsi, avec les notations définies précédemment et en négligeant la filiation  $^{214}\text{Pb}/^{214}\text{Bi}$ , l'équation 3.34 s'écrit :

$$\begin{aligned} B_{blanc}(^{135}\text{Xe}) = & b_{BDF}(ROI_{^{135}\text{Xe}})T_{acq} \\ & + A(^{214}\text{Pb})T_{acq} \frac{1 - \exp(-\lambda_{^{214}\text{Pb}}T_{acq})}{\lambda_{^{214}\text{Pb}}T_{acq}} \epsilon_{c,ROI_{^{135}\text{Xe}}} (^{214}\text{Pb}) \\ & + A(^{214}\text{Bi})T_{acq} \frac{1 - \exp(-\lambda_{^{214}\text{Bi}}T_{acq})}{\lambda_{^{214}\text{Bi}}T_{acq}} \epsilon_{c,ROI_{^{135}\text{Xe}}} (^{214}\text{Bi}). \end{aligned} \quad (3.35)$$

### Cas du $^{133}\text{Xe}$

Pour le  $^{133}\text{Xe}$ , la  $ROI$  de détection correspondante comprend les photons détectés entre 80 et 82 keV en coïncidence avec les électrons détectés entre 55 et 400 keV. Un détecteur HPGe de type BEGe5030P a une résolution en énergie suffisante (0,8 à 1 keV) pour séparer correctement les pics d'émissions de photon  $K\alpha$ -X des  $^{214}\text{Bi}$  (76,9 et 79,3 keV) et  $^{214}\text{Pb}$  (74,8 et 77,1 keV) de cette  $ROI_{^{133}\text{Xe}}$ . De plus, les radionucléides métastables ont des émissions coïncidentes de photons et d'électrons à des énergies photons plus basses (cf. tableau 1.8). Ces radionucléides ne vont donc pas participer au comptage de  $B_{blanc}(^{133}\text{Xe})$ . Ainsi, ce dernier s'écrit :

$$\begin{aligned} B_{blanc}(^{133}\text{Xe}) = & B_{BDF}(ROI_{^{133}\text{Xe}}) \\ & + B_{^{214}\text{Pb}}(ROI_{^{133}\text{Xe}}) + B_{^{214}\text{Bi}}(ROI_{^{133}\text{Xe}}) \\ & + B_{^{135}\text{Xe}}(ROI_{^{133}\text{Xe}}). \end{aligned} \quad (3.36)$$

Dans ce cas, comme pour les  $^{214}\text{Bi}$  et  $^{214}\text{Pb}$ , le  $^{135}\text{Xe}$  participe à  $B_{blanc}(^{133}\text{Xe})$  lorsqu'un photon  $\gamma$  émis par un  $^{135}\text{Xe}$  interagit par effet Compton avec le cristal de germanium et que l'électron associé est détecté par le détecteur PIPSBox. Ainsi au final,  $B_{blanc}(^{133}\text{Xe})$  est obtenu à partir de l'estimation par simulation Monte-Carlo du rendement de détection dans la  $ROI_{^{133}\text{Xe}}$  du  $^{214}\text{Pb}$ , du  $^{214}\text{Bi}$  et du  $^{135}\text{Xe}$ .

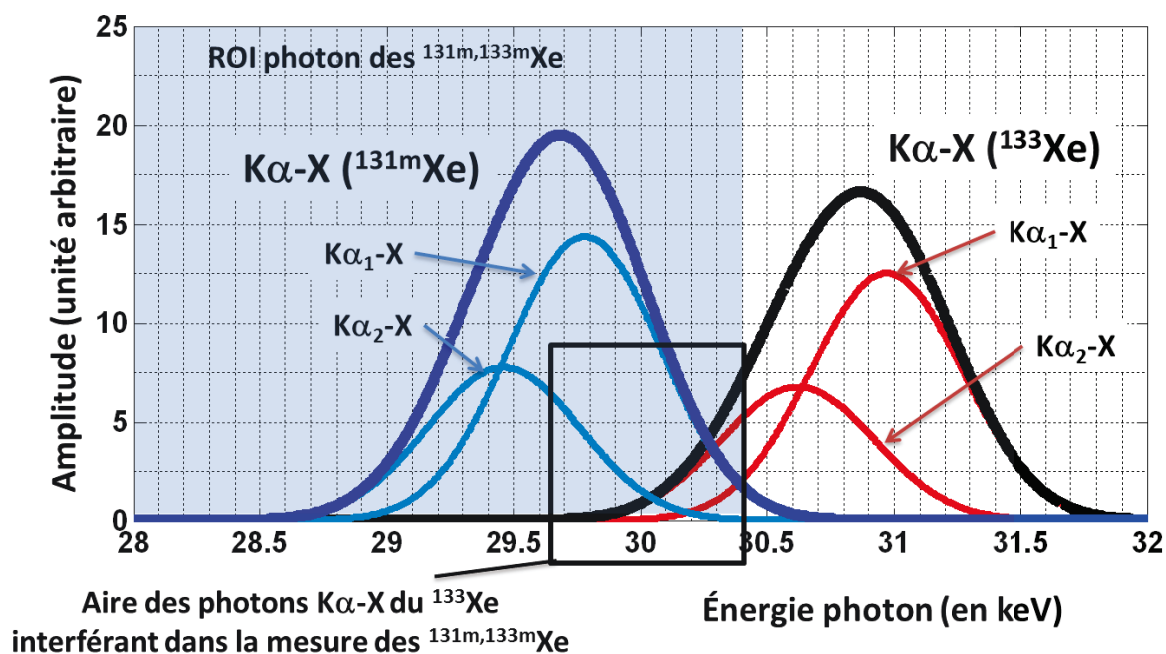
Ainsi, avec les notations définies précédemment l'équation 3.36 s'écrit :

$$\begin{aligned} B_{blanc}(^{133}\text{Xe}) = & b_{BDF}(ROI_{^{133}\text{Xe}})T_{acq} \\ & + A(^{214}\text{Pb})T_{acq} \frac{1 - \exp(-\lambda_{^{214}\text{Pb}}T_{acq})}{\lambda_{^{214}\text{Pb}}T_{acq}} \epsilon_{c,ROI_{^{133}\text{Xe}}} (^{214}\text{Pb}) \\ & + A(^{214}\text{Bi})T_{acq} \frac{1 - \exp(-\lambda_{^{214}\text{Bi}}T_{acq})}{\lambda_{^{214}\text{Bi}}T_{acq}} \epsilon_{c,ROI_{^{133}\text{Xe}}} (^{214}\text{Bi}) \\ & + A(^{135}\text{Xe})T_{acq} \frac{1 - \exp(-\lambda_{^{135}\text{Xe}}T_{acq})}{\lambda_{^{135}\text{Xe}}T_{acq}} \epsilon_{c,ROI_{^{133}\text{Xe}}} (^{135}\text{Xe}). \end{aligned} \quad (3.37)$$

Cas du  $^{133m}\text{Xe}$ 

Le  $^{133m}\text{Xe}$  est détecté par l'émission coïncidente de photons  $K\alpha$ -X et d'électrons K-CE. Ainsi  $ROI_{^{133m}\text{Xe}}$  a donc une "surface" plus faible que celles de  $ROI_{^{135}\text{Xe}}$  ou  $ROI_{^{133}\text{Xe}}$  puisqu'elle s'intéresse aux photons détectés entre 28 et 30 keV en coïncidence avec les électrons détectés entre 190 et 210 keV. L'émission de K-CE du  $^{131m}\text{Xe}$  est à plus faible énergie, donc sa contribution au comptage de  $B_{\text{blanc}}(^{133m}\text{Xe})$  est nulle. En revanche, tous les autres radionucléides vont y participer, et on a :

$$\begin{aligned} B_{\text{blanc}}(^{133m}\text{Xe}) = & B_{BDF}(ROI_{^{133m}\text{Xe}}) \\ & + B_{^{214}\text{Pb}}(ROI_{^{133m}\text{Xe}}) + B_{^{214}\text{Bi}}(ROI_{^{133m}\text{Xe}}) \\ & + B_{^{135}\text{Xe}}(ROI_{^{133m}\text{Xe}}) + B_{^{133}\text{Xe}}(ROI_{^{133m}\text{Xe}}). \end{aligned} \quad (3.38)$$



**Figure 3.10** – Schéma illustrant (exemple d'un mélange 50 %/50 % en activité de  $^{131m,133}\text{Xe}$ ) l'interférence des photons  $K\alpha$ -X des  $^{133,135}\text{Xe}$  dans la  $ROI$   $K\alpha$ -X des photons  $^{131m,133m}\text{Xe}$ . La courbe bleue claire représente le pic d'émission  $K\alpha$ -X du  $^{131m}\text{Xe}$  (en bleu foncé sont représentés les émissions  $K\alpha_1$  et  $K\alpha_2$ ). La courbe noire représente le pic d'émission  $K\alpha$ -X du  $^{133}\text{Xe}$  (en rouge sont représentés les émissions  $K\alpha_1$  et  $K\alpha_2$ ). Le détecteur considéré a une résolution en énergie de de 0,5 keV à 30 keV

Comme pour les radionucléides précédents, les contributions des  $^{214}\text{Pb}$  et  $^{214}\text{Bi}$  au bruit blanc de mesure du  $^{133m}\text{Xe}$  sont possibles lorsqu'un photon émit par l'un d'eux interagit par effet Compton avec le cristal de germanium, et que l'électron coïncident est mesuré entre 190 et 210 keV par le détecteur PIPSBox. Quand aux  $^{133}\text{Xe}$  et  $^{135}\text{Xe}$ , leur contribution est double. En effet, elle comptabilise :

- les événements de coïncidences  $\gamma/\beta$  lorsque le photon  $\gamma$  interagit par effet Compton avec le cristal de germanium et que l'électron est détecté par le détecteur PIPSBox.

- les événements de coïncidences  $K\alpha$ -X/électron ( $K$ -CE ou  $\beta^-$ ) lorsque la résolution du détecteur au germanium n'est pas suffisante pour séparer correctement les émissions  $K\alpha$ -X des  $^{133}\text{Xe}$  et  $^{135}\text{Xe}$  de celles du  $^{133m}\text{Xe}$ , comme illustré en figure 3.10. Dans cette figure, la zone entourée d'un carré noir correspond aux photons  $K\alpha$ -X ( $^{133}\text{Xe}$  ou  $^{135}\text{Xe}$ ) mesurés par le détecteur HPGe dans la  $ROI$  photon de  $^{133m}\text{Xe}$ .

On a alors (avec les notations de la section 3.2.4) :

$$B_{RX_i}(ROI_{^{133m}\text{Xe}}) = \left( \epsilon_{c,ROI_{^{133m}\text{Xe}}}(RX_i) + \epsilon_{r,ROI_{^{133m}\text{Xe}}}(RX_i) \right) \times N_d(RX_i) \quad (3.39)$$

en sachant que le  $^{133}\text{Xe}$  et le  $^{135}\text{Xe}$  émettent les mêmes photons  $K$ -X (seules les probabilités d'émission différent), et en notant :

- $E_{min}(ROI_{p,^{133m}\text{Xe}})$  et  $E_{max}(ROI_{p,^{133m}\text{Xe}})$  les bornes en énergie photon inférieure et supérieure de la  $ROI$  du  $^{133m}\text{Xe}$ ,
- $\sigma_{K\alpha_1}$  et  $\sigma_{K\alpha_2}$  les écarts-types des pics d'énergies (notée respectivement  $E_{K\alpha_1}$  et  $E_{K\alpha_2}$ ) des photons  $K\alpha_1$ - et  $K\alpha_2$ -X des  $^{133,135}\text{Xe}$  mesurés par le détecteur HPGe,
- $\epsilon_{K\alpha_1/\text{electron}}(RX_i)$  et  $\epsilon_{K\alpha_2/\text{electron}}(RX_i)$  les rendements de détection par coïncidences  $K\alpha_1$ -X/électron et  $K\alpha_2$ -X/électron de  $RX_i$ .
- et le ratio  $R_{e \in K\text{-CE}(^{133m}\text{Xe})}(RX_i)$  correspondant à la fraction du spectre électron ( $K$ -CE et  $\beta^-$ ) dans la région de l'émission  $K$ -CE de  $^{133m}\text{Xe}$  (190-210 keV).

on a :

$$\begin{aligned} \epsilon_{r,ROI_{^{133m}\text{Xe}}}(RX_i) &= R_{e \in K\text{-CE}(^{133m}\text{Xe})}(RX_i) \\ &\times \int_{E_{min}(ROI_{p,^{133m}\text{Xe}})}^{E_{max}(ROI_{p,^{133m}\text{Xe}})} \left[ \frac{\epsilon_{K\alpha_1/\text{electron}}(RX_i)}{\sigma_{K\alpha_1} \sqrt{2\pi}} \exp\left(-\frac{(E - E_{K\alpha_1})^2}{2\sigma_{K\alpha_1}^2}\right) \right. \\ &\quad \left. + \frac{\epsilon_{K\alpha_2/\text{electron}}(RX_i)}{\sigma_{K\alpha_2} \sqrt{2\pi}} \exp\left(-\frac{(E - E_{K\alpha_2})^2}{2\sigma_{K\alpha_2}^2}\right) \right] dE ; \end{aligned} \quad (3.40)$$

Cette équation exprime : (i) la part des électrons émis par le radioxénon  $RX_i$  aux énergies de détection du  $K$ -CE de  $^{133m}\text{Xe}$ , et (ii) l'effet de la résolution du détecteur illustré par la figure 3.10 et quantifié par l'intégrale ci-dessus. En considérant des changements de variables adaptés, cette équation se réécrit :

$$\begin{aligned} \frac{\epsilon_{r,ROI_{^{133m}\text{Xe}}}(RX_i)}{R_{e \in K\text{-CE}(^{133m}\text{Xe})}(RX_i)} &= \\ \frac{1}{2} \left[ \text{erf}\left(\frac{E_{max}(ROI_{p,^{133m}\text{Xe}}) - E_{K\alpha_1}}{\sigma_{K\alpha_1} \sqrt{2}}\right) - \text{erf}\left(\frac{E_{min}(ROI_{p,^{133m}\text{Xe}}) - E_{K\alpha_1}}{\sigma_{K\alpha_1} \sqrt{2}}\right) \right] &\epsilon_{K\alpha_1/\text{electron}}(RX_i) \\ + \frac{1}{2} \left[ \text{erf}\left(\frac{E_{max}(ROI_{p,^{133m}\text{Xe}}) - E_{K\alpha_2}}{\sigma_{K\alpha_2} \sqrt{2}}\right) - \text{erf}\left(\frac{E_{min}(ROI_{p,^{133m}\text{Xe}}) - E_{K\alpha_2}}{\sigma_{K\alpha_2} \sqrt{2}}\right) \right] &\epsilon_{K\alpha_2/\text{electron}}(RX_i) \end{aligned} \quad (3.41)$$

où erf est la fonction d'erreur de Gauss, définie comme :

$$\text{erf} : x \rightarrow \frac{2}{\sqrt{\pi}} \int_0^x \exp(-t^2) dt. \quad (3.42)$$

Sur la figure 3.10, on remarque que la courbe représentative de la distribution des photons  $K\alpha$ -X des  $^{133,135}\text{Xe}$  (courbe noire) atteint un niveau négligeable avant d'atteindre la limite inférieure en énergie photon de la ROI des  $^{131m,133m}\text{Xe}$  (*i.e.* 28 keV). Ceci est toujours vrai si la résolution (*i.e.* FWHM) du détecteur est doublée. Or  $\text{erf}(x) \rightarrow -1$  lorsque  $x \rightarrow -\infty$ . Cela permet de simplifier l'équation 3.41 de la manière suivante :

$$\begin{aligned} \frac{\epsilon_{r,ROI_{133m}\text{Xe}}(RX_i)}{R_{e\in K\text{-CE}(^{133m}\text{Xe})}(RX_i)} = & \frac{1}{2} \left[ \text{erf} \left( \frac{E_{\max}(ROI_{p,^{133m}\text{Xe}}) - E_{K\alpha_1}}{\sigma_{K\alpha_1} \sqrt{2}} \right) + 1 \right] \epsilon_{K\alpha_1/\text{electron}}(RX_i) \\ & + \frac{1}{2} \left[ \text{erf} \left( \frac{E_{\max}(ROI_{p,^{133m}\text{Xe}}) - E_{K\alpha_2}}{\sigma_{K\alpha_2} \sqrt{2}} \right) + 1 \right] \epsilon_{K\alpha_2/\text{electron}}(RX_i). \end{aligned} \quad (3.43)$$

Et sachant que :

- tel que défini dans ces travaux  $E_{\max}(ROI_{p,^{133m}\text{Xe}}) = 30,4$  keV,
- pour les  $^{133,135}\text{Xe}$  on a :  $E_{K\alpha_1} = 30,97$  keV et  $E_{K\alpha_2} = 30,63$  keV,
- pour un détecteur au germanium de type BEGe5030P, la résolution (FWHM) typique à 30 keV est de 0,5 keV. Or  $\sigma_{K\alpha_1} \approx \sigma_{K\alpha_2} \approx \text{FWHM}(30\text{keV})/(2\sqrt{2\ln(2)})$ . Ainsi,  $\sigma_{K\alpha_1} \approx \sigma_{K\alpha_2} \approx 0,21$  keV.

Avec ces données, les valeurs de la fonction erf sont obtenues numériquement et l'équation 3.43 s'écrit sous la forme de :

$$\begin{aligned} \epsilon_{r,ROI_{133m}\text{Xe}}(RX_i) = & R_{e\in K\text{-CE}(^{133m}\text{Xe})}(RX_i) \\ & \times \left( I(K\alpha_1) \epsilon_{K\alpha_1/\text{electron}}(RX_i) + I(K\alpha_2) \epsilon_{K\alpha_2/\text{electron}}(RX_i) \right). \end{aligned} \quad (3.44)$$

Avec :

$$\begin{aligned} I(K\alpha_1) = & \frac{1}{2} \left[ \text{erf} \left( \frac{E_{\max}(ROI_{p,^{133m}\text{Xe}}) - E_{K\alpha_1}}{\sigma_{K\alpha_1} \sqrt{2}} \right) + 1 \right] ; \\ & \simeq 3,63 \cdot 10^{-3}. \end{aligned}$$

Et :

$$\begin{aligned} I(K\alpha_2) = & \frac{1}{2} \left[ \text{erf} \left( \frac{E_{\max}(ROI_{p,^{133m}\text{Xe}}) - E_{K\alpha_2}}{\sigma_{K\alpha_2} \sqrt{2}} \right) + 1 \right] ; \\ & \simeq 1,39 \cdot 10^{-1}. \end{aligned}$$

Ainsi, au final en négligeant la filiation entre le  $^{214}\text{Pb}$  et le  $^{214}\text{Bi}$  et en notant  $\epsilon_{c,ROI_{133m}\text{Xe}}(X)$  le rendement de détection (obtenu par simulation Monte-Carlo) du radionucléide  $X$  dans

la  $ROI$  du  $^{133m}\text{Xe}$  lorsque le photon associé à  $X$  a interagit par effet Compton avec le cristal de germanium. Le bruit blanc de mesure du  $^{133m}\text{Xe}$  s'écrit :

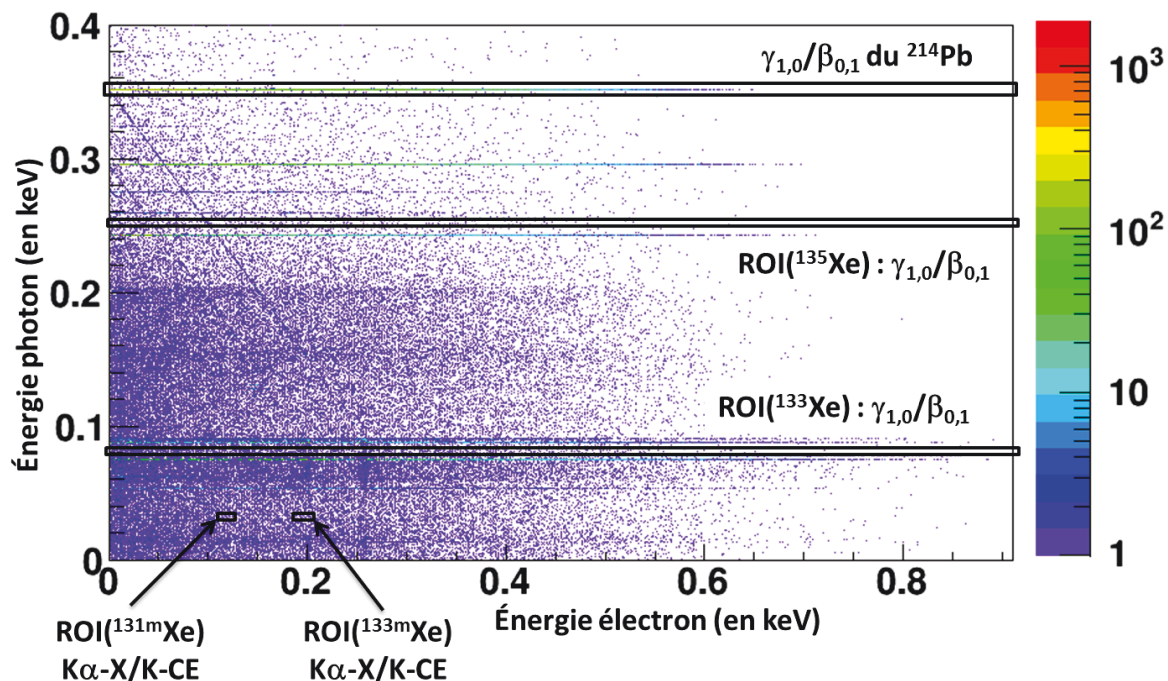
$$\begin{aligned}
B_{\text{blanc}}(^{133m}\text{Xe}) = & b_{BDF}(ROI_{^{133m}\text{Xe}})T_{\text{acq}} \\
& + A(^{214}\text{Pb})T_{\text{acq}} \frac{1 - \exp(-\lambda_{^{214}\text{Pb}}T_{\text{acq}})}{\lambda_{^{214}\text{Pb}}T_{\text{acq}}} \epsilon_{c,ROI_{^{133m}\text{Xe}}} (^{214}\text{Pb}) \\
& + A(^{214}\text{Bi})T_{\text{acq}} \frac{1 - \exp(-\lambda_{^{214}\text{Bi}}T_{\text{acq}})}{\lambda_{^{214}\text{Bi}}T_{\text{acq}}} \epsilon_{c,ROI_{^{133m}\text{Xe}}} (^{214}\text{Bi}) \\
& + A(^{133}\text{Xe})T_{\text{acq}} \frac{1 - \exp(-\lambda_{^{133}\text{Xe}}T_{\text{acq}})}{\lambda_{^{133}\text{Xe}}T_{\text{acq}}} \left[ \epsilon_{c,ROI_{^{133m}\text{Xe}}} (^{133}\text{Xe}) \right. \\
& \quad \left. + R_{e \in \text{K-CE}(^{133m}\text{Xe})}(^{133}\text{Xe}) \left( I(\text{K}\alpha_1) \epsilon_{\text{K}\alpha_1/\text{electron}}(^{133}\text{Xe}) + I(\text{K}\alpha_2) \epsilon_{\text{K}\alpha_2/\text{electron}}(^{133}\text{Xe}) \right) \right] \\
& + A(^{135}\text{Xe})T_{\text{acq}} \frac{1 - \exp(-\lambda_{^{135}\text{Xe}}T_{\text{acq}})}{\lambda_{^{135}\text{Xe}}T_{\text{acq}}} \left[ \epsilon_{c,ROI_{^{133m}\text{Xe}}} (^{135}\text{Xe}) \right. \\
& \quad \left. + R_{e \in \text{K-CE}(^{133m}\text{Xe})}(^{135}\text{Xe}) \left( I(\text{K}\alpha_1) \epsilon_{\text{K}\alpha_1/\text{electron}}(^{135}\text{Xe}) + I(\text{K}\alpha_2) \epsilon_{\text{K}\alpha_2/\text{electron}}(^{135}\text{Xe}) \right) \right].
\end{aligned} \tag{3.45}$$

### Cas du $^{131m}\text{Xe}$

Parce que les bornes en énergie photon de la  $ROI$  du  $^{133m}\text{Xe}$  sont identiques à celles du  $^{131m}\text{Xe}$ , l'équation 3.38 s'adapte au cas du  $^{131m}\text{Xe}$  en y ajoutant la contribution du  $^{133m}\text{Xe}$ . Le comptage imputable à ce dernier dans le bruit blanc de mesure du  $^{131m}\text{Xe}$  est dû aux événements de désintégration  $\text{K}\alpha\text{-X}/\text{K-CE}$  du  $^{133m}\text{Xe}$  lorsque l'électron ne dépose qu'une partie de son énergie dans le détecteur PIPS. Ainsi, en utilisant des notations similaires au cas précédent et en négligeant les filiations (entre le  $^{214}\text{Pb}$  et le  $^{214}\text{Bi}$  et entre le  $^{133m}\text{Xe}$  et le  $^{133}\text{Xe}$ ) on a :

$$\begin{aligned}
B_{\text{blanc}}(^{131m}\text{Xe}) = & b_{BDF}(ROI_{^{131m}\text{Xe}})T_{\text{acq}} \\
& + A(^{214}\text{Pb})T_{\text{acq}} \frac{1 - \exp(-\lambda_{^{214}\text{Pb}}T_{\text{acq}})}{\lambda_{^{214}\text{Pb}}T_{\text{acq}}} \epsilon_{c,ROI_{^{131m}\text{Xe}}} (^{214}\text{Pb}) \\
& + A(^{214}\text{Bi})T_{\text{acq}} \frac{1 - \exp(-\lambda_{^{214}\text{Bi}}T_{\text{acq}})}{\lambda_{^{214}\text{Bi}}T_{\text{acq}}} \epsilon_{c,ROI_{^{131m}\text{Xe}}} (^{214}\text{Bi}) \\
& + A(^{133}\text{Xe})T_{\text{acq}} \frac{1 - \exp(-\lambda_{^{133}\text{Xe}}T_{\text{acq}})}{\lambda_{^{133}\text{Xe}}T_{\text{acq}}} \left[ \epsilon_{c,ROI_{^{131m}\text{Xe}}} (^{133}\text{Xe}) \right. \\
& \quad \left. + R_{e \in \text{K-CE}(^{131m}\text{Xe})}(^{133}\text{Xe}) \left( I(\text{K}\alpha_1) \epsilon_{\text{K}\alpha_1/\text{electron}}(^{133}\text{Xe}) + I(\text{K}\alpha_2) \epsilon_{\text{K}\alpha_2/\text{electron}}(^{133}\text{Xe}) \right) \right] \\
& + A(^{135}\text{Xe})T_{\text{acq}} \frac{1 - \exp(-\lambda_{^{135}\text{Xe}}T_{\text{acq}})}{\lambda_{^{135}\text{Xe}}T_{\text{acq}}} \left[ \epsilon_{c,ROI_{^{131m}\text{Xe}}} (^{135}\text{Xe}) \right. \\
& \quad \left. + R_{e \in \text{K-CE}(^{131m}\text{Xe})}(^{135}\text{Xe}) \left( I(\text{K}\alpha_1) \epsilon_{\text{K}\alpha_1/\text{electron}}(^{135}\text{Xe}) + I(\text{K}\alpha_2) \epsilon_{\text{K}\alpha_2/\text{electron}}(^{135}\text{Xe}) \right) \right] \\
& + A(^{133m}\text{Xe})T_{\text{acq}} \frac{1 - \exp(-\lambda_{^{133m}\text{Xe}}T_{\text{acq}})}{\lambda_{^{133m}\text{Xe}}T_{\text{acq}}} \times \epsilon_{ROI_{^{131m}\text{Xe}}} (^{133m}\text{Xe}).
\end{aligned} \tag{3.46}$$

## Synthèse



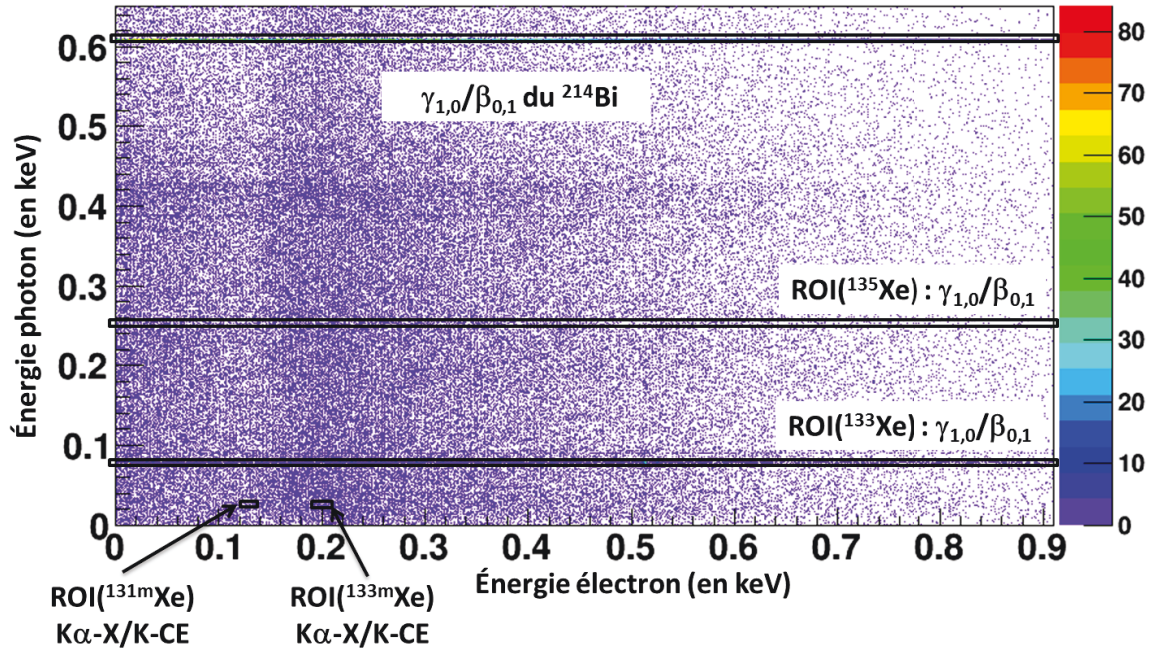
**Figure 3.11** – Spectre simulé de la mesure par coïncidences de  $^{214}\text{Pb}$ . Pour ce spectre, un million de désintégrations du  $^{214}\text{Pb}$  ont été simulées. Les *ROI* de mesure des radionucléides sont illustrées, ainsi que celles des événements de coïncidence  $\gamma/\beta$  du  $^{214}\text{Pb}$ . Les rendements de détection du  $^{214}\text{Pb}$  dans les *ROI* des radionucléides ont été déterminés et sont donnés dans le tableau 3.4.

L'ensemble des rendements utilisés dans les équations 3.35, 3.37, 3.45 et 3.46 ont été obtenus par simulation Monte-Carlo. Ces simulations Monte-Carlo sont illustrées en figures 3.4, 3.5 et 3.6 pour les radionucléides (cf. section 3.2.2) et en figures 3.11 et 3.12 pour les descendants du radon. Les résultats de ces simulations sont donnés dans le tableau 3.4. Ces rendements sont des indicateurs de l'influence d'un radionucléide donné dans le bruit de fond d'un des radionucléides. Ainsi, on remarque que les descendants du radon ont une influence environ dix fois plus importantes dans la *ROI* des  $^{133,135}\text{Xe}$  que dans celle des  $^{131m,133m}\text{Xe}$ . Cela est directement relié à la nature des événements de coïncidences considérés pour la mesure des radionucléides, sachant que les  $^{214}\text{Pb}$  et  $^{214}\text{Bi}$  sont des émetteurs  $\beta^-$  :

- les  $^{133,135}\text{Xe}$  sont mesurés par coïncidences  $\gamma/\beta$ , la *ROI* électron associée couvre alors une fraction conséquente des spectres  $\beta_{214\text{Bi}}^-$  et  $\beta_{214\text{Pb}}^-$ .
- les  $^{131m,133m}\text{Xe}$  sont mesurés par coïncidences  $\text{K}\alpha\text{-X/K-CE}$ , la *ROI* électron associée s'étend sur 20 keV et ne couvre alors qu'une petite fraction des spectres  $\beta_{214\text{Bi}}^-$  et  $\beta_{214\text{Pb}}^-$ .

En revanche, les équations 3.35, 3.37, 3.45 et 3.46 ne prennent pas correctement en compte les activités en  $^{214}\text{Pb}$  et  $^{214}\text{Bi}$  de l'échantillon considéré. En effet, deux raccourcis





**Figure 3.12** – Spectre simulé de la mesure par coïncidences de  $^{214}\text{Bi}$ . Pour ce spectre, un million de désintégration du  $^{214}\text{Bi}$  ont été simulées. Les *ROI* de mesure des radionucléides sont illustrées, ainsi que celles des événements de coïncidences  $\gamma/\beta$  du  $^{214}\text{Bi}$ . Les rendements de détection du  $^{214}\text{Bi}$  dans les *ROI* des radionucléides ont été déterminés et sont donnés dans le tableau 3.4.

majeurs sont à corriger car : (i) ce n'est pas seulement l'activité initiale en  $^{214}\text{Pb}$  et  $^{214}\text{Bi}$  qui est importante, mais aussi l'activité initiale en  $^{222}\text{Rn}$  (et les équations citées ci-dessus ne la prennent pas en compte), et (ii) la filiation entre le  $^{214}\text{Pb}$  et le  $^{214}\text{Bi}$  doit être prise en compte. Une manière de s'affranchir correctement de ces filiations est d'exprimer les bruits blancs correspondants ( $B_{214\text{Pb}}(ROI_{RX_i})$  et  $B_{214\text{Bi}}(ROI_{RX_i})$  pour le radionucléide  $RX_i$ ) en fonction de l'aire de l'un des pics caractéristiques de ces radionucléides dans le spectre photon  $\gamma$  direct. Par exemple, en utilisant l'aire (notée  $N_{\gamma_{5,0}}(^{214}\text{Pb})$ ) du pic d'émission  $\gamma_{5,0}$  du  $^{214}\text{Pb}$  (à 351,9 keV) et l'aire (notée  $N_{\gamma_{1,0}}(^{214}\text{Bi})$ ) du pic d'émission  $\gamma_{1,0}$  du  $^{214}\text{Bi}$  (à 609,3 keV), les contributions au bruit blanc de mesure d'un radionucléide  $RX_i$  des  $^{214}\text{Pb}$  et  $^{214}\text{Bi}$  s'écrivent :

$$B_{214\text{Pb}}(ROI_{RX_i}) = N_{\gamma_{5,0}}(^{214}\text{Pb}) \epsilon_{c,ROI_{RX_i}}(\gamma_{5,0}(^{214}\text{Pb})), \quad (3.47)$$

et :

$$B_{214\text{Bi}}(ROI_{RX_i}) = N_{\gamma_{1,0}}(^{214}\text{Bi}) \epsilon_{c,ROI_{RX_i}}(\gamma_{1,0}(^{214}\text{Bi})), \quad (3.48)$$

où  $\epsilon_{c,ROI_{RX_i}}(\gamma_{1,0}(^{214}\text{Bi}))$  est le ratio entre le comptage du  $^{214}\text{Bi}$  dans la *ROI* de  $RX_i$  et celui dans la *ROI* de  $\gamma_{1,0}(^{214}\text{Bi})$ , et  $\epsilon_{c,ROI_{RX_i}}(\gamma_{5,0}(^{214}\text{Pb}))$  est le ratio entre le comptage du  $^{214}\text{Pb}$  dans la *ROI* de mesure de  $RX_i$  et celui dans la *ROI* de  $\gamma_{5,0}(^{214}\text{Pb})$ . De plus, dans une station Gaz Noble SPALAX la quantité de radon présent dans un échantillon est directement donnée en comptage dans la *ROI* à 351,9 keV du photon  $\gamma$  de  $^{214}\text{Pb}$ . Cette notation permet d'exprimer plus correctement et plus facilement les interférences liées au

Radionucléide	Grandeur	Rendement de détection (en $s^{-1}/Bq$ )			
		$^{135}Xe$	$^{133}Xe$	$^{133m}Xe$	$^{131m}Xe$
$^{214}Pb$	$\epsilon_{c,ROI_{RX_i}}$	$5,7 \cdot 10^{-4}$ (11 %)	$5,0 \cdot 10^{-4}$ (11 %)	$5,1 \cdot 10^{-5}$ (17 %)	$5,3 \cdot 10^{-5}$ (17 %)
$^{214}Bi$	$\epsilon_{c,ROI_{RX_i}}$	$6,7 \cdot 10^{-4}$ (11 %)	$3,6 \cdot 10^{-4}$ (11 %)	$4,9 \cdot 10^{-5}$ (17 %)	$2,9 \cdot 10^{-5}$ (21 %)
$^{135}Xe$	$\epsilon_{c,ROI_{RX_i}}$	— —	$5,8 \cdot 10^{-4}$ (11 %)	$1,3 \cdot 10^{-4}$ (13 %)	$9,5 \cdot 10^{-5}$ (14 %)
	$R_{e \in K-CE(RX_i)}$	— —	— —	$9,8 \cdot 10^{-2}$ (10 %)	$3,8 \cdot 10^{-2}$ (10 %)
	$\epsilon_{K\alpha_1}/electron$	$9,4 \cdot 10^{-3}$ (10 %)	— —	— —	— —
	$\epsilon_{K\alpha_2}/electron$	$5,0 \cdot 10^{-3}$ (10 %)	— —	— —	— —
$^{133}Xe$	$\epsilon_{c,ROI_{RX_i}}$	— —	— —	$1,5 \cdot 10^{-4}$ (13 %)	$3,2 \cdot 10^{-4}$ (12 %)
	$R_{e \in K-CE(RX_i)}$	— —	— —	$1,8 \cdot 10^{-2}$ (10 %)	$4,8 \cdot 10^{-2}$ (10 %)
	$\epsilon_{K\alpha_1}/electron$	— —	$6,6 \cdot 10^{-2}$ (10 %)	— —	— —
	$\epsilon_{K\alpha_2}/electron$	— —	$3,6 \cdot 10^{-2}$ (10 %)	— —	— —
$^{133m}Xe$	$\epsilon_{ROI_{RX_i}}$	— —	— —	— —	$3,7 \cdot 10^{-3}$ (11 %)

**Tableau 3.4** – Simulation Monte-Carlo des différents rendements de détection utilisés dans les équations 3.35, 3.37, 3.45 et 3.46. Chacune de ces valeurs a été obtenue par simulation d'un million d'événements. Les incertitudes associées sont données entre parenthèses.

radon.

Radionucléide	Grandeur	Émission $\gamma$	Ratio (en coups/coups $\gamma$ propre)			
			$^{135}Xe$	$^{133}Xe$	$^{133m}Xe$	$^{131m}Xe$
$^{214}Pb$	$\epsilon_{c,ROI_{RX_i}}(\gamma)$	352 keV	$1,3 \cdot 10^{-2}$ (11 %)	$1,1 \cdot 10^{-2}$ (11 %)	$1,2 \cdot 10^{-3}$ (17 %)	$1,2 \cdot 10^{-3}$ (17 %)
$^{214}Bi$	$\epsilon_{c,ROI_{RX_i}}(\gamma)$	609 keV	$2,6 \cdot 10^{-2}$ (11 %)	$1,4 \cdot 10^{-2}$ (11 %)	$1,9 \cdot 10^{-3}$ (17 %)	$1,1 \cdot 10^{-3}$ (21 %)

**Tableau 3.5** – Contribution du  $^{214}Pb$  et du  $^{214}Bi$  dans le bruit blanc de mesure des radionucléides. Cette contribution est normalisée par le comptage du pic d'émission  $\gamma$  respectif des ces deux radio-éléments, tel que définit dans les équations 3.47 et 3.48. Ces contributions sont obtenues par simulation Monte-Carlo.

Les ratios définis dans les équations 3.47 et 3.48 ont été obtenus à partir des données du tableau 3.4 et des rendements d'absorption totale par émission de photon  $\gamma$  des  $^{214}Pb$  et  $^{214}Bi$ . Ils sont présentés dans le tableau 3.5.

De même, les rendements de détection d'un radionucléide dans la  $ROI$  propre d'un autre radionucléide, tels que donnés dans le tableau 3.6, ne permettent pas de comparer directe-

Radionucléide	Rendement d'interférence entre radionucléides (en s <sup>-1</sup> /Bq)		
	<sup>133</sup> Xe	<sup>133m</sup> Xe	<sup>131m</sup> Xe
<sup>135</sup> Xe	5,8.10 <sup>-4</sup> (11 %) [0,69 %]	2,1.10 <sup>-4</sup> (13 %) [0,24 %]	1,2.10 <sup>-4</sup> (14 %) [0,14 %]
<sup>133</sup> Xe	—	2,5.10 <sup>-4</sup> (13 %) [0,63 %]	5,7.10 <sup>-4</sup> (12 %) [1,5 %]
<sup>133m</sup> Xe	—	—	3,7.10 <sup>-3</sup> (11 %) [10%]

**Tableau 3.6** – Rendements d'interférence entre radionucléides. Le pourcentage entre parenthèses correspond à l'incertitude sur ce rendement. Le pourcentage entre crochet correspond au ratio entre le rendement d'interférence du radionucléide considéré et son rendement de détection.

ment les interférences relatives entre les différents radionucléides. Néanmoins, à partir de ces valeurs, le rendement de détection "global" (*i.e.* prenant en compte l'ensemble des contributions) peut être obtenu. Ce rendement de détection "global" est appelé rendement d'interférence. Ces rendements d'interférence ont été calculés et sont donnés dans le tableau 3.6. Dans ce cas, le détecteur au germanium considéré a une résolution (FWHM) de 0,5 keV aux énergies photons considérées (*i.e.* entre 29 et 31 keV).

Pour les <sup>133m,133,135</sup>Xe les ratio entre leurs rendements d'interférence et leur rendement de détection sont indiqués entre crochets dans le tableau 3.6. Ce ratio permet de relier directement les impulsions générées par un radionucléide dans une *ROI* donnée en fonction du comptage qu'il a généré dans sa *ROI* propre. Ainsi par exemple, 1000 coups nets relevés dans la *ROI* propre du <sup>135</sup>Xe permet d'estimer que 69 coups dans la *ROI* du <sup>133</sup>Xe sont attribuables à ce dernier.

Concernant la filiation entre le <sup>133m</sup>Xe et le <sup>133</sup>Xe négligée précédemment, quelques commentaires sont nécessaires :

- dans l'équation 3.35, les activités en <sup>133m</sup>Xe ou en <sup>133</sup>Xe n'interviennent pas donc cette filiation n'est pas à prendre en compte.
- dans l'équation 3.37, l'activité en <sup>133</sup>Xe est par définition considérée comme nulle, mais pas celle en <sup>133m</sup>Xe. En revanche, l'activité de <sup>133m</sup>Xe n'a pas besoin d'être intégrée à l'équation car elle est déjà prise en compte lors du calcul de l'activité de <sup>133</sup>Xe (cf. équation 3.24).
- dans l'équation 3.45, par définition l'activité en <sup>133m</sup>Xe est nulle.
- enfin, dans l'équation 3.46, une légère modification est à prendre en compte afin de considérer correctement le nombre d'atomes de <sup>133</sup>Xe qui se sont désintégrés durant la mesure. Ainsi dans ce cas, en se référant aux équations 3.21 et 3.23 :

$$\begin{aligned}
N_d(^{133}\text{Xe}) = & A(^{133}\text{Xe})T_{acq} \frac{1 - \exp(-\lambda_{133}\text{Xe}T_{acq})}{\lambda_{133}\text{Xe}T_{acq}} \\
& + \frac{\lambda_{133}\text{Xe}T_{acq}}{\lambda_{133}\text{Xe} - \lambda_{133m}\text{Xe}} A(^{133m}\text{Xe})T_{acq} \left( \frac{1 - \exp(-\lambda_{133m}\text{Xe}T_{acq})}{\lambda_{133m}\text{Xe}T_{acq}} - \frac{1 - \exp(-\lambda_{133}\text{Xe}T_{acq})}{\lambda_{133}\text{Xe}T_{acq}} \right)
\end{aligned} \tag{3.49}$$

Au final, en ce qui concerne les interférences de mesures entre les différents radioxénons, les équations 3.35, 3.37, 3.45 et 3.46 et les tableaux 3.2, 3.5 et 3.6 nous informent que :

- le bruit de fond dans la *ROI* d'un radioxénon est très faible : (i) jusqu'à 1,7 impulsions (dans la *ROI* du  $^{135}\text{Xe}$ ) pour une mesure en stations Gaz Noble SPALAX (fonctionnant en cycle de 12h, sans veto cosmique mais avec un blindage passif optimisé), et (ii) jusqu'à 2,2 impulsions (dans la *ROI* du  $^{135}\text{Xe}$ ) pour une mesure en laboratoire (pendant 6 jours avec veto cosmique).
- la mesure en coïncidences  $\gamma_{1,0}/\beta_{0,1}$  du  $^{135}\text{Xe}$  n'est pas influencée par la désintégration des autres radioxénons éventuellement présents dans l'échantillon.
- la mesure en coïncidences  $\gamma_{1,0}/\beta_{0,1}$  du  $^{133}\text{Xe}$  n'est influencée que par la radioactivité en  $^{135}\text{Xe}$  de l'échantillon. Mais cette influence est très faible puisqu'il y a un facteur 145 entre le rendement de détection du  $^{135}\text{Xe}$  et celui du  $^{133}\text{Xe}$  (dans la *ROI* du  $^{133}\text{Xe}$ ).
- la mesure en coïncidence  $K\alpha\text{-X}/K\text{-CE}$  du  $^{133m}\text{Xe}$  est influencée à part presque égale par les  $^{133,135}\text{Xe}$ .
- la mesure en coïncidences  $K\alpha\text{-X}/K\text{-CE}$  du  $^{131m}\text{Xe}$  est très majoritairement influencée par l'activité en  $^{133m}\text{Xe}$  (ce dernier a 6,5 fois plus d'influence que le  $^{133}\text{Xe}$ ). Mais ceci est à nuancer avec le fait que de manière générale, le rapport d'activité entre le  $^{133}\text{Xe}$  et le  $^{133m}\text{Xe}$  est très favorable au  $^{133}\text{Xe}$  (d'environ au moins 8 fois).
- les descendants du radon ( $^{214}\text{Pb}$  et  $^{214}\text{Bi}$ ) interfèrent plus avec la mesure des  $^{133,135}\text{Xe}$  qu'avec celle des  $^{131m,133m}\text{Xe}$ . En particulier, pour les xénons métastables l'influence des  $^{214}\text{Pb}$  et  $^{214}\text{Bi}$  est environ dix fois plus faible que celle des  $^{133,135}\text{Xe}$ .
- au final, les rendements d'interférence entre radioxénons sont faibles. Ceci garantit un taux limité de faux positifs de la configuration HPGe/PIPSBox pour la mesure des radioxénons.

### 3.2.5 Application : cas de DPRK 2013

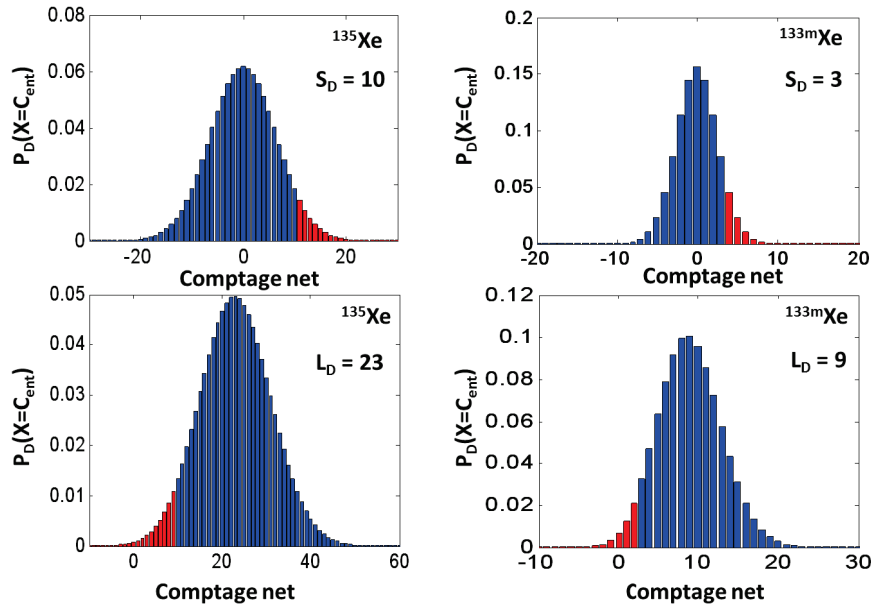
Enfin, pour conclure, les performances du système PORTHOS/PIPSBox équipé d'un veto cosmique pour la mesure des traces environnementales de radioxénons ont été calculées dans une étude de cas : l'essai nucléaire nord-coréen du 12 février 2013 (voir Ringbom *et al.* (2014)). Le panache de gaz nobles radioactifs émis par cet essai a été déclaré détecté plusieurs semaines plus tard le 7 avril 2013 par la station Gaz Noble JPX38 du Système de Surveillance International du TICE. Cette détection est caractérisée par :

- 2,1 mBq/m<sup>3</sup> de  $^{133}\text{Xe}$ ,
- 0,20 mBq/m<sup>3</sup> de  $^{131m}\text{Xe}$ ,

- et pas de signal au dessus du seuil de décision pour le  $^{133m}\text{Xe}$  et  $^{135}\text{Xe}$ . Néanmoins, les auteurs donnent une  $L_c$  de 0,12 mBq/m<sup>3</sup> (pour le  $^{133m}\text{Xe}$ ) et de 0,35 mBq/m<sup>3</sup> (pour le  $^{135}\text{Xe}$ ). Dans ce contexte, la  $L_c$  est l'activité volumique correspondant à un comptage de  $S_D$  impulsions.

L'étude de cas consiste à estimer quelles auraient été les activités minimales détectables ( $AMD$ ) et les  $L_c$  données par la station JPX38 si cette dernière avait été une station SPALAX équipée d'un système de détection par coïncidence photon/électron haute résolution. Sachant que :

- une station Gaz Noble SPALAX produit un échantillon environnemental de radionucléides non en prélevant entre 70 et 80 m<sup>3</sup> d'air en 12 heures.
- on relève environ 500 coups (ou impulsions) nets attribuables aux  $^{214}\text{Pb}$  et  $^{214}\text{Bi}$  dans leurs  $ROI$  respectives, pour un échantillon produit par une station Gaz Noble SPALAX et mesuré pendant 12h.



**Figure 3.13** – Spectre des distributions des comptages nets ( $C_{net} = C - B$ ) pour le calcul des  $S_D$  et  $L_D$  des  $^{135,133m}\text{Xe}$ . Les estimations de bruit de blanc de mesure sont de 3,4 coups (pour le  $^{133m}\text{Xe}$ ) et 20,9 coups (pour le  $^{135}\text{Xe}$ ), ainsi les  $S_D$  et  $L_D$  sont obtenus à partir des équations 1.21 et 1.23 du cas des très faible taux de comptage (*i.e.* en utilisant la loi de Skellam, cf. section 1.4.1).

En se servant de ces informations et en utilisant les données des tableaux 3.5 et 3.6, les bruits blancs de mesure de chacun des radionucléides ont été estimés (pour une mesure de 12h, sans veto cosmique). Ensuite, les  $S_D$  (pour les quatre radionucléides) et les  $L_D$  (pour les  $^{135,133m}\text{Xe}$  non détectés) ont été calculés dans le cas des très faibles taux de comptage en résolvant les inéquations 1.21 et 1.23. Enfin, à l'aide du tableau donnant les rendements de détection des radionucléides en coïncidences photon/électron (cf. tableau

3.1), les activités minimales détectables (noté  $AMD$ , pour les  $^{135,133m}\text{Xe}$  non détectés) et les  $L_c$  ont été calculées. L'ensemble de ces résultats sont synthétisés dans le tableau 3.7.

Radionucléide	Bruit Blanc estimé (coups)	Activité volumique (mBq/m <sup>3</sup> )	$L_c^{**}$ (mBq/m <sup>3</sup> )
$^{135}\text{Xe}$	20,9	$AMD = 0,30$	$1,3 \cdot 10^{-1}$ [2,7]
$^{133}\text{Xe}$	13,4	2,1*	$5,4 \cdot 10^{-2}$ [1,5]
$^{133m}\text{Xe}$	3,4	$AMD = 7,8 \cdot 10^{-2}$	$2,6 \cdot 10^{-2}$ [4,6]
$^{131m}\text{Xe}$	5,4	0,2*	$3,4 \cdot 10^{-2}$ [3,8]

**Tableau 3.7** – Étude de cas : essai nucléaire DPRK 2013, dans le cas d'une station gaz noble de type SPALAX équipée d'un détecteur photon/électron à haute résolution en énergie.\* : ces valeurs sont celles fournies dans l'article de Ringbom *et al.* (2014). \*\* : Le  $L_c$  est la valeur de  $S_D$  rapportée en activité volumique, la valeur donnée entre crochet est le gain constaté par rapport aux données fournies dans l'article de Ringbom *et al.* (2014).

Comme détaillé dans le chapitre 1, une station SAUNA met en œuvre une détection par coïncidence photon/électron à basse résolution en énergie, en utilisant un scintillateur plastique (BC-404) pour la détection des électrons et un scintillateur inorganique pour la détection des photons (NaI(Tl)). Au final, le tableau 3.7 montre un gain en sensibilité d'une configuration de mesure HPGe/PIPSBox (même sans veto cosmique) par rapport à une configuration de type SAUNA. Cela, malgré la diminution du rendement géométrique de détection d'une telle configuration. Ce gain est largement attribuable à la haute résolution en énergie (photon et électron) du système HPGe/PIPSBox, qui permet de diminuer grandement les bruits blancs de mesure en limitant les interférences entre radionucléides lors de la mesure des radionucléides.

### 3.3 Mesures de coïncidences photon/photon

#### 3.3.1 Radionucléides concernés

Lorsqu'un échantillon est faiblement actif, il a été montré dans le chapitre 2 que le spectromètre GAMMA<sup>3</sup> permettait d'atteindre des limites de détection très basses. En revanche, à cause du fond Compton des détecteurs HPGe, ceci n'est plus vrai lors de la mesure d'un échantillon actif. Dans ce cas, pour les radionucléides dont le schéma de décroissance le permet, la mise en place de mesures en coïncidences photon/photon permet, au prix d'une perte de rendement, de lever l'ambiguïté pour l'attribution d'un pic, ou d'augmenter le rapport signal sur bruit lorsque le bruit de fond est dominé par le fond Compton de l'échantillon.

Un certain nombre de radionucléides d'intérêt pour le TICE sont émetteurs multi- $\gamma$ . On retiendra en particulier :  $^{24,22}\text{Na}$ ,  $^{99}\text{Mo}$ ,  $^{120,124,125,126}\text{Sb}$ ,  $^{130,132}\text{I}$ ,  $^{132}\text{Te}$ ,  $^{134,136}\text{Cs}$ ,  $^{140}\text{Ba}$ ,  $^{140}\text{La}$ ,  $^{152,154}\text{Eu}$ , ou encore  $^{108m,110m}\text{Ag}$ .

#### 3.3.2 Mesure de bruit de fond

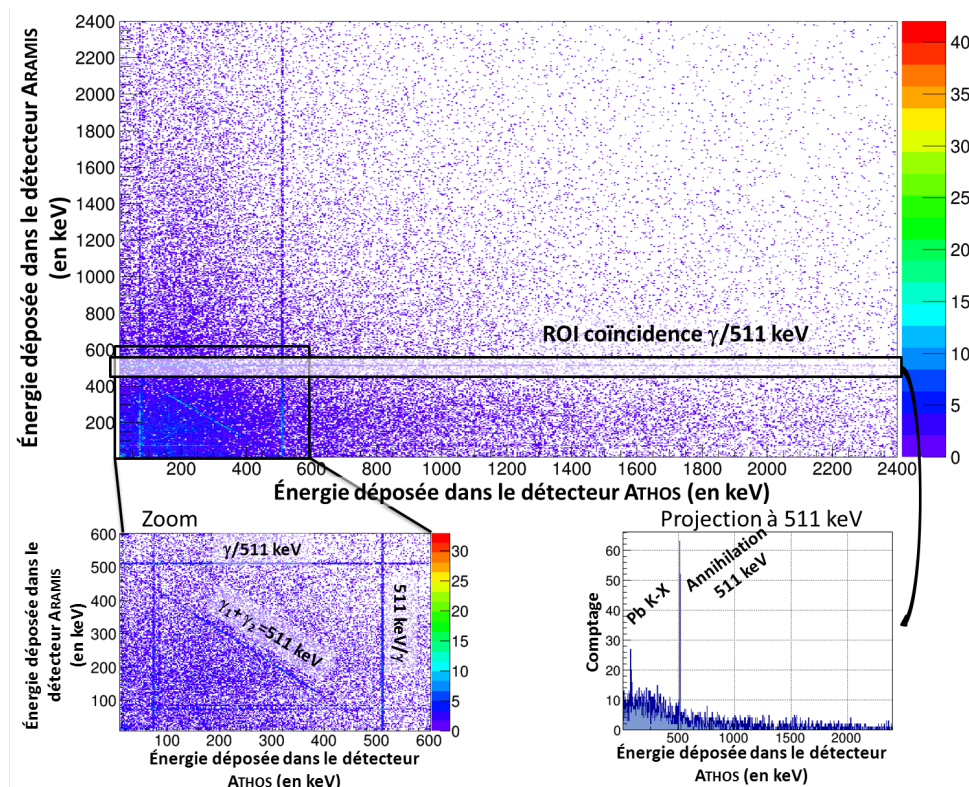
Une mesure de bruit de fond du spectromètre GAMMA<sup>3</sup> a été effectuée pendant 16,2 jours. Les spectres de bruit de fond en coïncidences photon/photon résultant de cette mesure sont donnés en figure 3.14 (sans utiliser le veto cosmique) ou en figure 3.15 (en utilisant le veto cosmique). Les spectres de bruit de fond (et les taux de comptage intégraux associés) des photons mesurés par le détecteur ATHOS sont montrés en figure 3.16 dans trois configurations (cf. figure pour la numérotation) :

- A. coïncidence avec les photons (d'énergie comprise entre 20 et 2400 keV) mesurés par le détecteur ARAMIS.
- B. coïncidence avec les photons (d'énergie comprise entre 20 et 2400 keV) mesurés par le détecteur ARAMIS, lorsque le veto cosmique est activé.
- C. coïncidence avec les photons (entre 20 et 2400 keV) mesurés par le détecteur ARAMIS, lorsque le veto cosmique est activé, et en coïncidence avec les photons (entre 20 et 2400 keV) mesurés par le détecteur PORTHOS.

Le bruit de fond en coïncidences photon/photon sans veto cosmique (cf. figure 3.14) est composé principalement d'un fond continu d'événements dispersés sur 20-2400 keV et de lignes de coïncidences 511 keV/ $\gamma$  et K-X(Pb)/ $\gamma$ . Ces événements sont principalement dus au flux de muons cosmiques. De plus, on observe une diagonale correspondant à des photons de 511 keV qui déposent une partie de leur énergie (par effet Compton) dans un détecteur et le complément d'énergie dans l'autre détecteur (*via* le photon Compton associé).

Le spectre de bruit de fond en coïncidences photon/photon avec veto cosmique présente un taux de comptage très bas de  $2,4 \cdot 10^{-3} \text{ s}^{-1}$ . Trois événements d'intérêts sont très

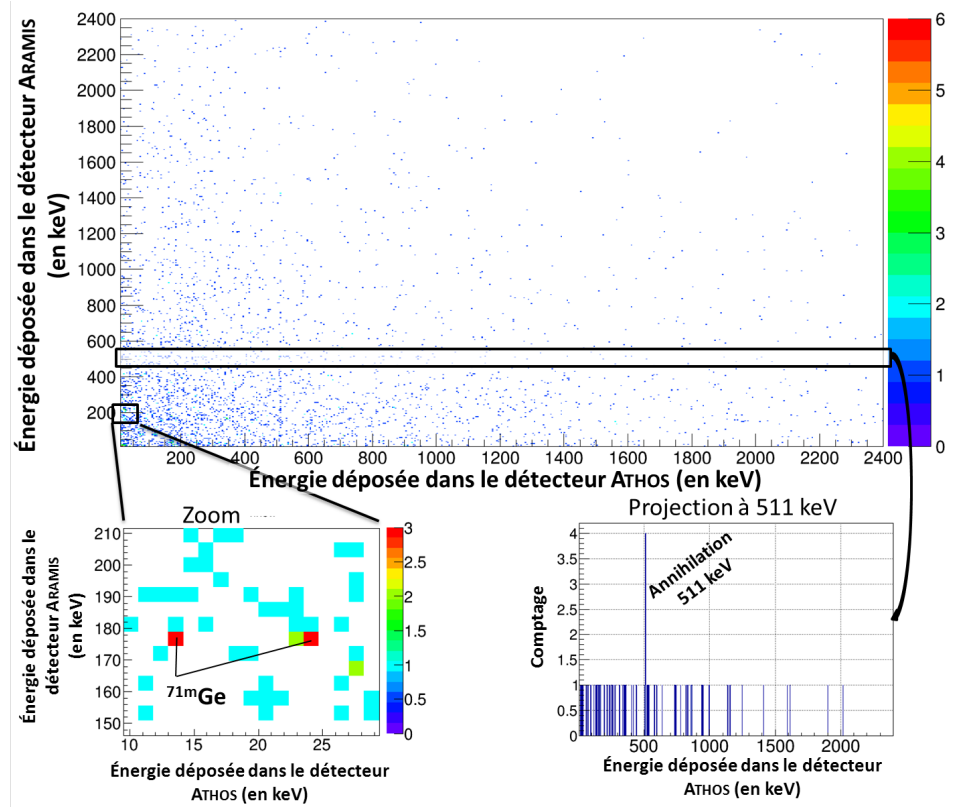




**Figure 3.14** – Spectre de bruit de fond en coïncidence photon/photon mesuré pendant 16,2 jours. La configuration de mesure implique les détecteurs ATHOS et ARAMIS. Un zoom de la gamme d'énergie entre 0 et 600 keV est montré en bas à gauche de la figure. On y observe les lignes de coïncidence  $\gamma/511$  keV et une ligne diagonale correspondant à un photon de 511 keV (déposant de l'énergie dans les deux détecteurs HPGe par effet Compton). En bas à droite de la figure est présenté le spectre des photons mesurés par le détecteur ATHOS en coïncidence avec un photon mesuré à 511 keV par le détecteur ARAMIS.

clairement observés : des événements de coïncidences 511 keV/511 keV et des événements de coïncidences attribuables au  $^{71m}\text{Ge}$  (pic d'activation du germanium, cf. tableau 1.6 du chapitre 1). En effet, lors de la décroissance du  $^{71m}\text{Ge}$ , deux photons sont émis en cascade (voir figure 3.17 et cf. Murray *et al.* (1971)). Le photon à 23,4 keV est fortement converti et l'électron de conversion interne de couche K associé a une énergie de 12,3 keV. Les événements de coïncidences 23,4 keV/176,2 keV correspondent donc à la détection du photon  $\gamma_{1,0}$  (de 176,2 keV, cf. figure 3.17) avec : (i) soit la détection totale du photon  $\gamma_{2,1}$  ou (ii) soit la détection du K-CE( $\gamma_{2,1}$ ) et du photon K-X associé. Quant aux événements de coïncidences 13 keV/176,2 keV, ils correspondent à la détection du photon  $\gamma_{1,0}$  (de 176,2 keV, cf. figure 3.17) en coïncidences : (i) avec le photon  $\gamma_{2,1}$  lorsqu'il ne dépose qu'une partie de son énergie ou (ii) avec le K-CE( $\gamma_{2,1}$ ) lorsque le photon K-X n'est pas détecté (parce qu'il s'échappe du cristal). Un photon de faible énergie (*i.e.* d'énergie environ inférieure à 40 keV) peut ne déposer qu'une partie de son énergie. C'est le cas lorsque le photon K-X émis (d'environ 11 keV) lors de l'effet photoélectrique s'échappe du cristal de germanium sans avoir été absorbé.

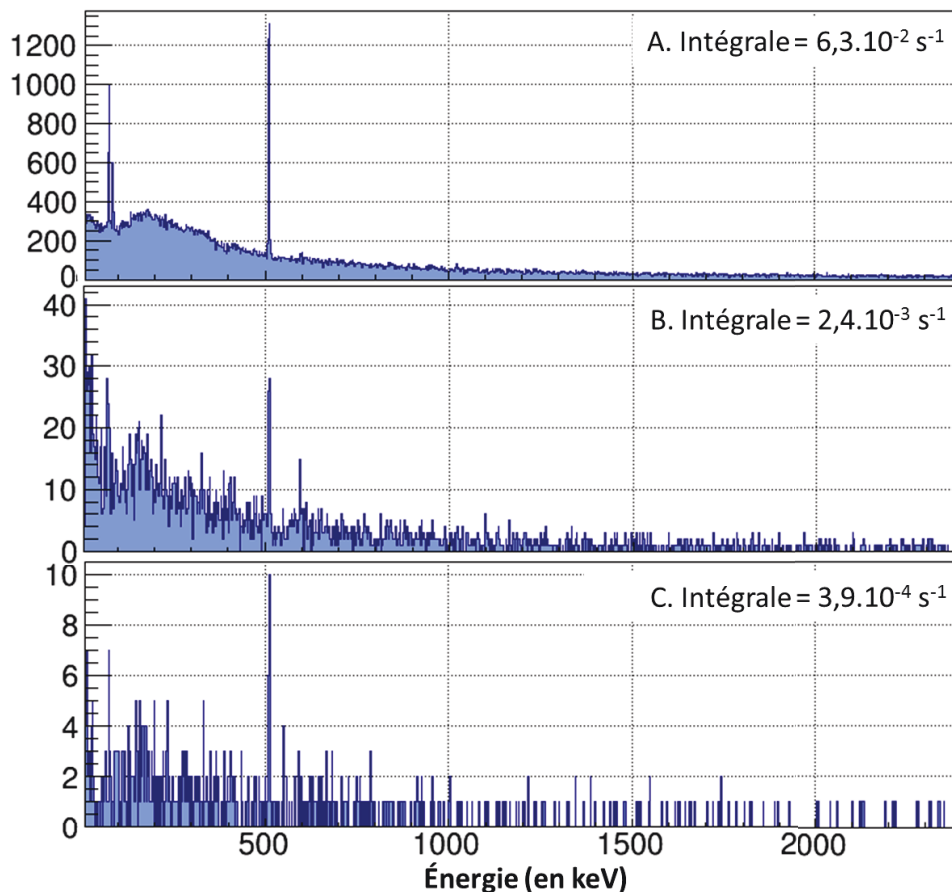




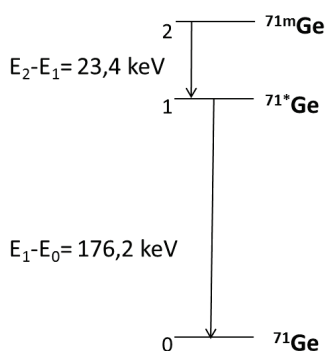
**Figure 3.15** – Spectre de bruit de fond en coïncidence photon/photon mesuré pendant 16,2 jours lorsque le veto cosmique est activé. La configuration de mesure implique les détecteurs ATHOS et ARAMIS. Un zoom (dont la résolution en énergie a été artificiellement dégradée) sur la région  $[150 - 210] \times [10 - 30]$  (en keV) est montré en bas à gauche de la figure. On y observe deux événements de coïncidence d'intérêts correspondant au  $^{71m}\text{Ge}$  : la coïncidence 23,4 keV/176,2 keV et la coïncidence 13 keV/176,2 keV. En bas à droite de la figure est présenté le spectre des photons mesurés par le détecteur ATHOS en coïncidence avec un photon mesuré à 511 keV par le détecteur ARAMIS, ce spectre présente un comptage beaucoup plus faible que son équivalent en figure 3.14

On remarque que l'effet du veto cosmique sur les bruits de fond de coïncidences photon/photon est plus marqué que pour un bruit de fond de spectrométrie d'émission  $\gamma$  directe. En effet, le veto cosmique diminue le bruit de fond en mesure directe d'un facteur 11 (cf. figure 2.16 en chapitre 2) alors qu'il diminue le bruit de fond en coïncidences d'un facteur 26 (cf. figure 3.16). Ceci signifie que la part d'événements d'origine cosmique est plus prépondérante dans le bruit de fond (sans veto cosmique) d'une mesure en coïncidence que dans celui d'une mesure directe.

Le bruit de fond d'une mesure en coïncidences à trois photons (photon/photon/photon) avec le veto cosmique est extrêmement bas. Son comptage intégral est de  $3,9 \cdot 10^{-4} \text{ s}^{-1}$ , ce qui est 8 fois plus faible que celui du bruit de fond présenté en figure 3.15. En contre-partie de ce bruit de fond négligeable, les rendements de détection sont aussi fortement diminués.



**Figure 3.16** – Spectres de photons mesurés par le détecteur ATHOS : en coïncidence avec les photons détectés par le détecteur ARAMIS (cas A. spectre du haut), puis les mêmes événements en activant le veto cosmique (cas B. spectre du milieu), et enfin en rajoutant la condition d’une coïncidence avec un photon mesuré entre 20 et 2400 keV par le détecteur PORTHOS.

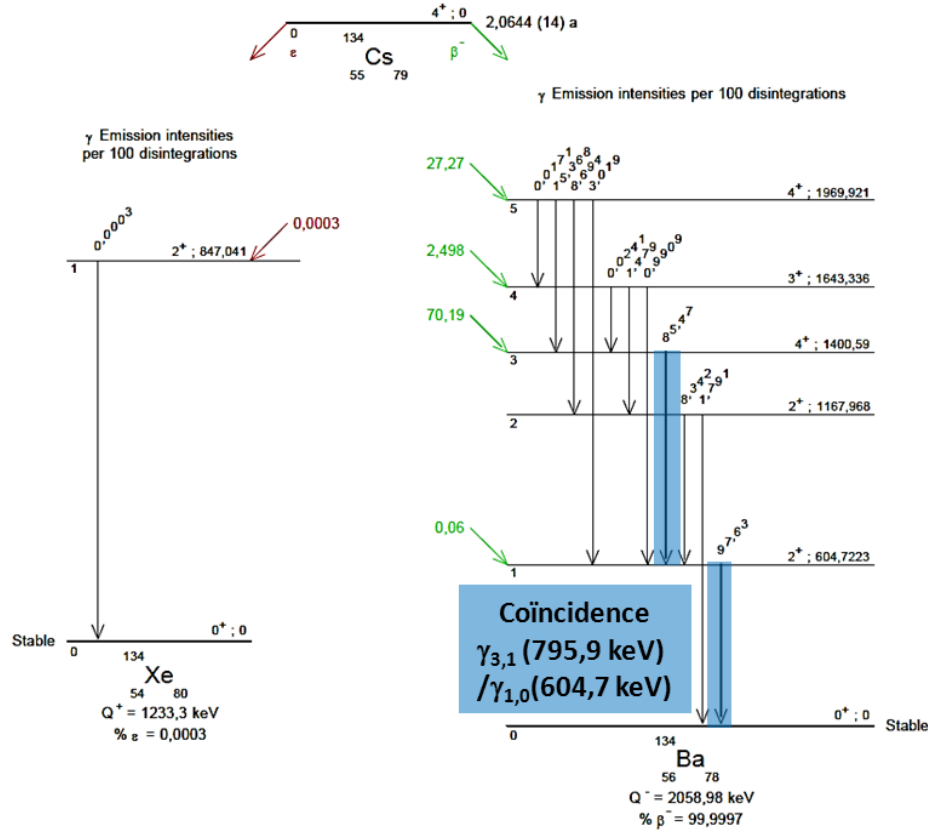


**Figure 3.17** – Schéma simplifié de la décroissance du  $^{71m}\text{Ge}$  en  $^{71}\text{Ge}$ . La transition directe de l’état métastable (numéroté 2 sur le schéma) à l’état stable (numéroté 0 sur le schéma) n’est pas possible. Ce schéma est inspiré de Murray *et al.* (1971).

Deux mesures de radionucléides dont le schéma se prête à la mesure en coïncidences photon/photon ou à trois photons sont détaillées par la suite. L’étude de mesures en coïncidences photon/photon du  $^{134}\text{Cs}$  est présentée en section 3.3.3. Et un cas d’étude d’un

échantillon SG500 composé d'un mélange de  $^{110m}\text{Ag}$  et de  $^{40}\text{K}$  mesuré par coïncidences à trois photons est présenté en section 3.4.1.

### 3.3.3 Étude de cas : le $^{134}\text{Cs}$



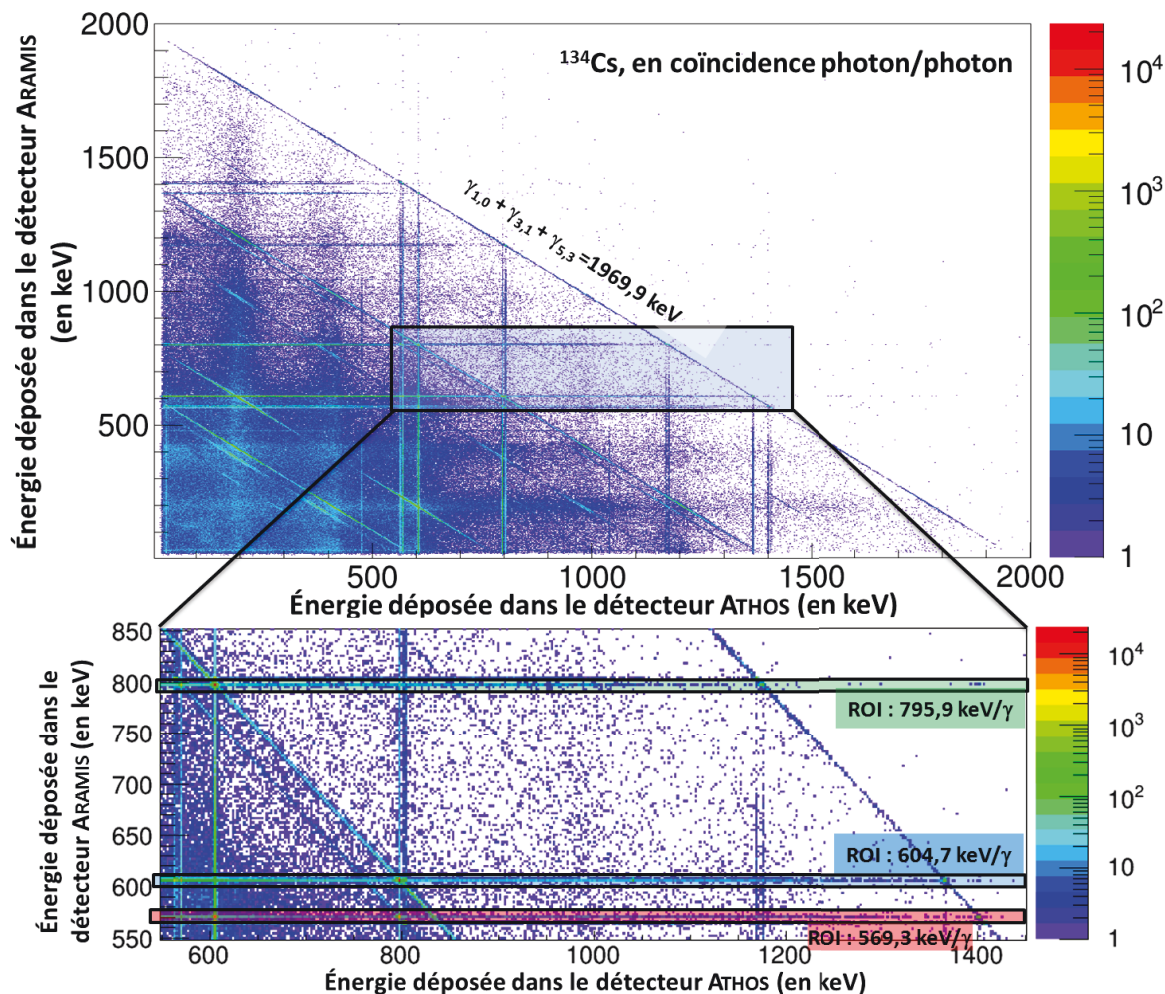
**Figure 3.18** – Schéma de décroissance du  $^{134}\text{Cs}$ . Source : Chisté *et al.* (2014). L'émission coïncidente  $\gamma_{3,1}/\gamma_{1,0}$  est surlignée en bleu clair.

Le  $^{134}\text{Cs}$  est un produit d'activation d'intérêt majeur pour le TICE. Son schéma de désintégration est donné en figure 3.18. Il se désintègre soit par capture électronique en  $^{134}\text{Xe}$  soit par émission  $\beta^-$  en  $^{134}\text{Ba}$ . Au vu du schéma de désintégration de ce dernier, c'est la coïncidence  $\gamma_{3,1}(795,8 \text{ keV})/\gamma_{1,0}(604,7 \text{ keV})$  qui est la plus propice à sa mesure. La probabilité d'une telle transition est :

$$P_{\gamma_{3,1}/\gamma_{1,0}}(^{134}\text{Cs}) = P_{\gamma_{3,1}}(^{134}\text{Cs}) \times P_{\gamma_{1,0}|\gamma_{3,1}}(^{134}\text{Cs}). \quad (3.50)$$

Or,  $P_{\gamma_{1,0}|\gamma_{3,1}}(^{134}\text{Cs}) = 0,994$ , donc  $P_{\gamma_{3,1}/\gamma_{1,0}}(^{134}\text{Cs}) = 85,2 \%$ .

Deux mesures du  $^{134}\text{Cs}$  ont été effectuées, correspondant à deux cas de figure. En premier lieu, c'est un étalon de 4,16 kBq de  $^{134}\text{Cs}$  qui a été mesuré pendant 66,4 minutes afin d'étalonner la configuration de mesure ATHOS/ARAMIS. Les spectres de cette mesure sont donnés en figure 3.19 (pour les spectres de coïncidences à deux dimensions) et en figure 3.20 (pour le spectre direct et les spectres de coïncidences projetés). Dans un

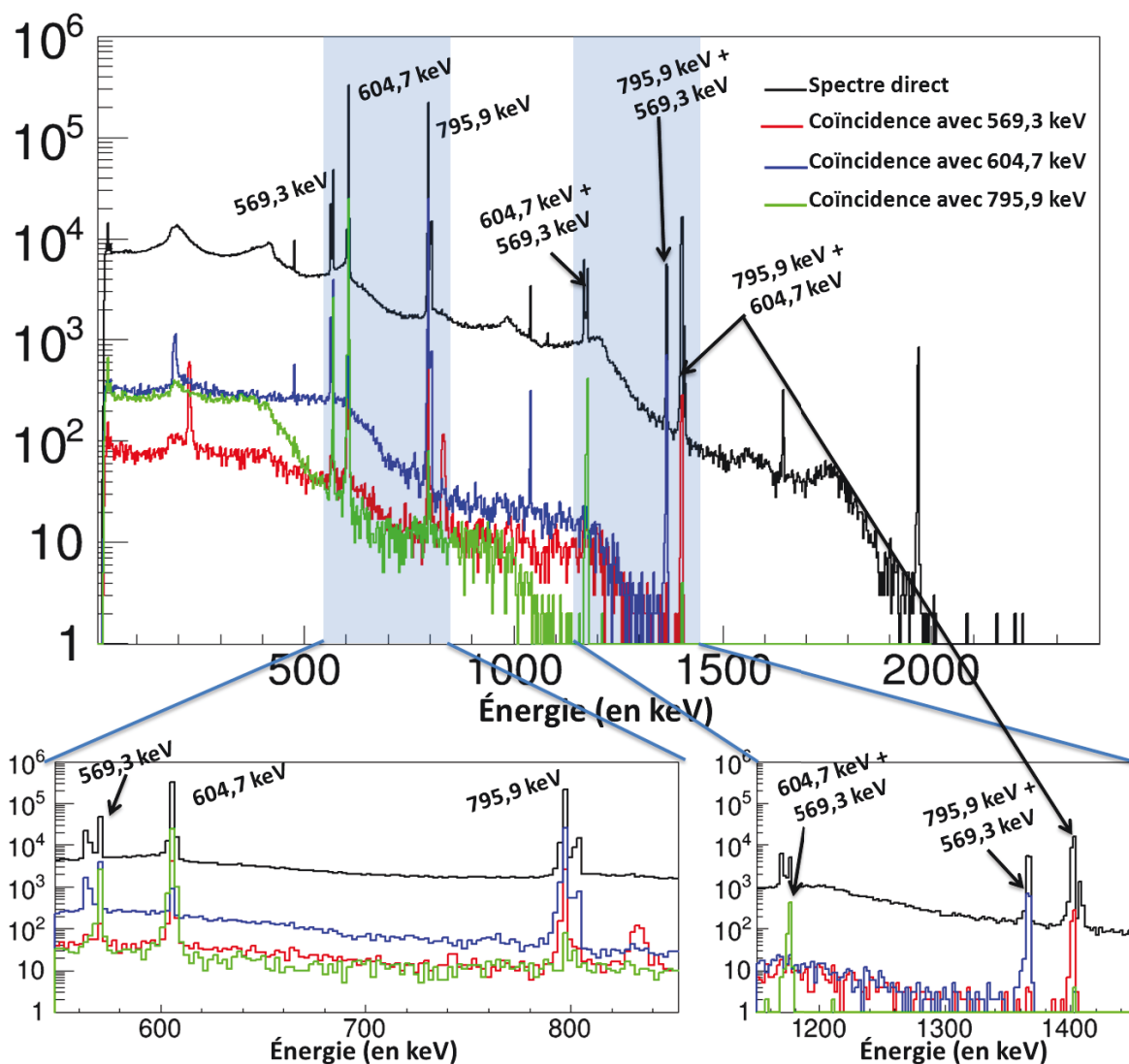


**Figure 3.19** – Spectre de coïncidences photon/photon d'une source de  $^{134}\text{Cs}$  de 4,16 kBq placée entre les détecteurs ATHOS et ARAMIS. Le temps d'acquisition de cette mesure est de 66,4 min. Les événements coïncidents observés correspondent bien au schéma de désintégration du  $^{134}\text{Cs}$  (cf. figure 3.18). Les régions d'intérêts des événements  $\gamma_{1,0}(604,7 \text{ keV})/\gamma$  (en bleu),  $\gamma_{3,1}(795,9 \text{ keV})/\gamma$  (en vert) et  $\gamma_{5,3}(569,3 \text{ keV})/\gamma$  (en rouge) sont données sur la partie inférieure de la figure.

second temps, une faible activité de  $^{134}\text{Cs}$  (13 mBq) a été injectée dans un filtre frais de prélèvement des particules atmosphériques. Le filtre est "frais", c'est à dire qu'il provient directement d'une station de prélèvement et a donc une forte activité en descendants des  $^{222,220}\text{Rn}$ . Cet échantillon a été mesuré en configuration ATHOS/ARAMIS pendant 4100 minutes. Le but était de masquer la présence de  $^{134}\text{Cs}$  en mesure direct mais de le détecter en mesure de coïncidences photon/photon. Les résultats de ces mesures sont présentés en figure 3.21 et 3.22.

Ainsi, la figure 3.19 donne la signature en coïncidences photon/photon du  $^{134}\text{Cs}$ . Chacune des lignes observées sur la figure correspond à des événements de coïncidences particuliers faisant intervenir un effet Compton :

- les lignes en diagonale correspondent à un photon qui interagit par effet Comp-



**Figure 3.20** – Spectres d'émission de photons d'une source de  $^{134}\text{Cs}$  (4,16 kBq) placée entre les détecteurs ATHOS et ARAMIS. La durée d'acquisition de cette mesure est de 66,4 min. La courbe noire représente le spectre mesuré par le détecteur ATHOS. La courbe rouge représente le spectre des photons mesurés dans le détecteur ATHOS en coïncidence avec des photons de 569,3 keV mesurés dans le détecteur ARAMIS. La courbe bleue représente le spectre des photons mesurés dans le détecteur ATHOS en coïncidence avec des photons de 604,7 keV mesurés dans le détecteur ARAMIS. La courbe verte représente le spectre des photons mesurés dans le détecteur ATHOS en coïncidence avec des photons de 795,8 keV mesurés dans le détecteur ARAMIS. Le zoom en bas à gauche s'intéresse aux photons entre 550 et 850 keV.

ton dans un détecteur et dont le photon Compton créé est ensuite détecté par le deuxième détecteur.

- les lignes horizontales (ou verticales) correspondent à deux photons en cascade, lorsque un photon dépose toute son énergie dans un détecteur et le deuxième photon ne dépose qu'une partie de son énergie (par effet Compton) dans le deuxième détecteur.

Les spectres photon en direct ou en coïncidences avec  $\gamma_{1,0}$ ,  $\gamma_{3,1}$  ou  $\gamma_{5,3}$  (cf. *ROI* sur la partie inférieure de la figure 3.21) sont donnés en figure 3.22. On observe :

- Sur le spectre en rouge (photons coïncidents avec  $\gamma_{5,3}$  à 569,3 keV), les événements de coïncidences  $\gamma_{3,1}(795,9 \text{ keV})/\gamma_{5,3}$ ,  $\gamma_{1,0}(604,7 \text{ keV})/\gamma_{5,3}$  et  $\gamma_{3,1} + \gamma_{1,0}(1400,6 \text{ keV})/\gamma_{5,3}$  (et aucun pic à 569,3 keV).
- Sur le spectre en bleu (photons coïncidents avec  $\gamma_{1,0}$  à 604,7 keV), les événements de coïncidences  $\gamma_{3,1}(795,9 \text{ keV})/\gamma_{1,0}$ ,  $\gamma_{5,3}(569,3 \text{ keV})/\gamma_{1,0}$  et  $\gamma_{3,1} + \gamma_{5,3}(1365,2 \text{ keV})/\gamma_{1,0}$  (et aucun pic à 604,7 keV).
- Sur le spectre en vert (photons coïncidents avec  $\gamma_{3,1}$  à 795,9 keV), les événements de coïncidences  $\gamma_{1,0}(604,7 \text{ keV})/\gamma_{3,1}$ ,  $\gamma_{5,3}(569,3 \text{ keV})/\gamma_{3,1}$  et  $\gamma_{5,3} + \gamma_{1,0}(1174 \text{ keV})/\gamma_{3,1}$  (et aucun pic à 795,9 keV).

Configuration	Événement	Rendement de détection (en $\text{s}^{-1}/\text{kBq}$ )		Écart
		Calcul direct	Calcul selon l'équation 3.51	
ATHOS/ARAMIS	$\gamma_{1,0}/\gamma_{3,1}$	3,82	3,58	6,6 %
	$\gamma_{3,1}/\gamma_{1,0}$	3,81	3,60	5,7 %

**Tableau 3.8** – Étalonnage en rendement de détection de la configuration de mesure ATHOS/ARAMIS pour le  $^{134}\text{Cs}$ . La source est ponctuelle, au contact d'un filtre 3M compressé de prélèvement des particules atmosphériques blanc (*i.e.* sans radioactivité), placé entre les deux détecteurs.

Le rendement de détection du  $^{134}\text{Cs}$  par coïncidences  $\gamma_{1,0}/\gamma_{3,1}$  peut être obtenu de deux façons différentes. Il est obtenu directement par calcul du comptage dans la *ROI* de coïncidence associée. Ou alors il est obtenu en considérant la formule suivante :

$$\epsilon_{\gamma_{1,0}/\gamma_{3,1}}(^{134}\text{Cs}) = \epsilon_{\gamma_{1,0}} \times \epsilon_{\gamma_{3,1}} \times P_{\gamma_{1,0}/\gamma_{3,1}}(^{134}\text{Cs}). \quad (3.51)$$

Cette formule est valide dans le cas d'une source ponctuelle, et lorsque les corrélations angulaires entre les directions d'émissions des photons  $\gamma$  sont négligées (cf. Hamilton (1940)).

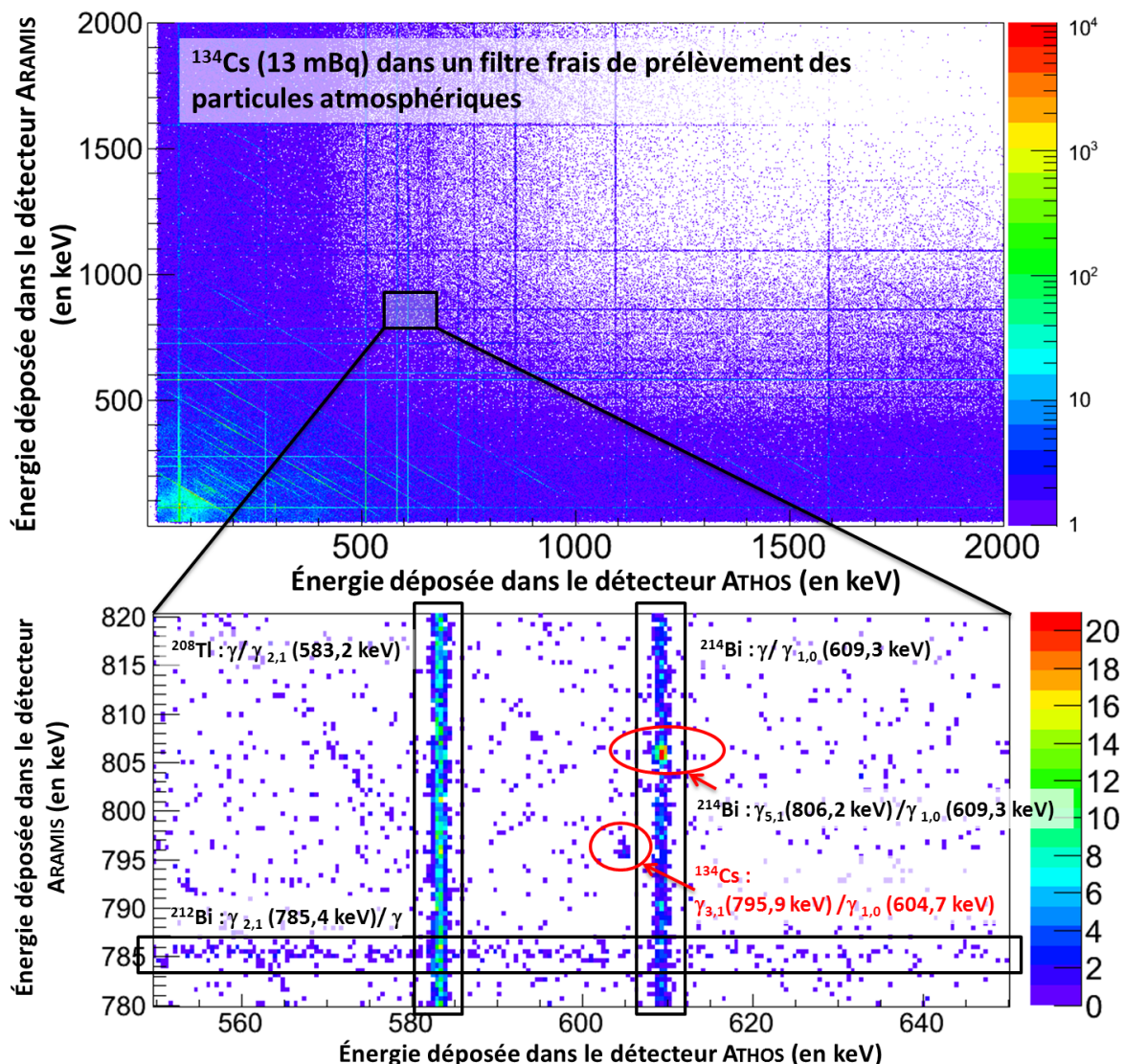
Les résultats de ces calculs sont donnés dans le tableau 3.8. On observe ainsi une bonne similitude entre les rendements  $\gamma_{1,0}/\gamma_{3,1}$  et  $\gamma_{3,1}/\gamma_{1,0}$ . Ceci est dû au fait que les détecteurs ATHOS et ARAMIS sont tous les deux des détecteurs BEGe5030P aux caractéristiques géométriques très proches. On remarque aussi une bonne similitude entre le calcul du rendement de détection  $\epsilon_{\gamma_{1,0}/\gamma_{3,1}}$  de façon expérimentale ou selon l'équation 3.51. Les écarts constatés sont d'environ 6 %. Ceux-ci peuvent être en partie expliqués par les corrélations angulaires. En effet, celles-ci s'expriment selon :

$$W(\theta) = 1 + \sum_{i=1}^l a_i \cos^{2i} \theta. \quad (3.52)$$

Où  $W(\theta)$  est la probabilité (non normalisée, *i.e.* à un facteur de normalisation près) que deux photons  $\gamma$  successifs soient émis avec un angle  $\theta$ .  $2l$  est l'ordre du plus bas multipôle impliqué dans la transition. Les coefficients  $a_i$  sont tabulés. Dans le cas des transitions

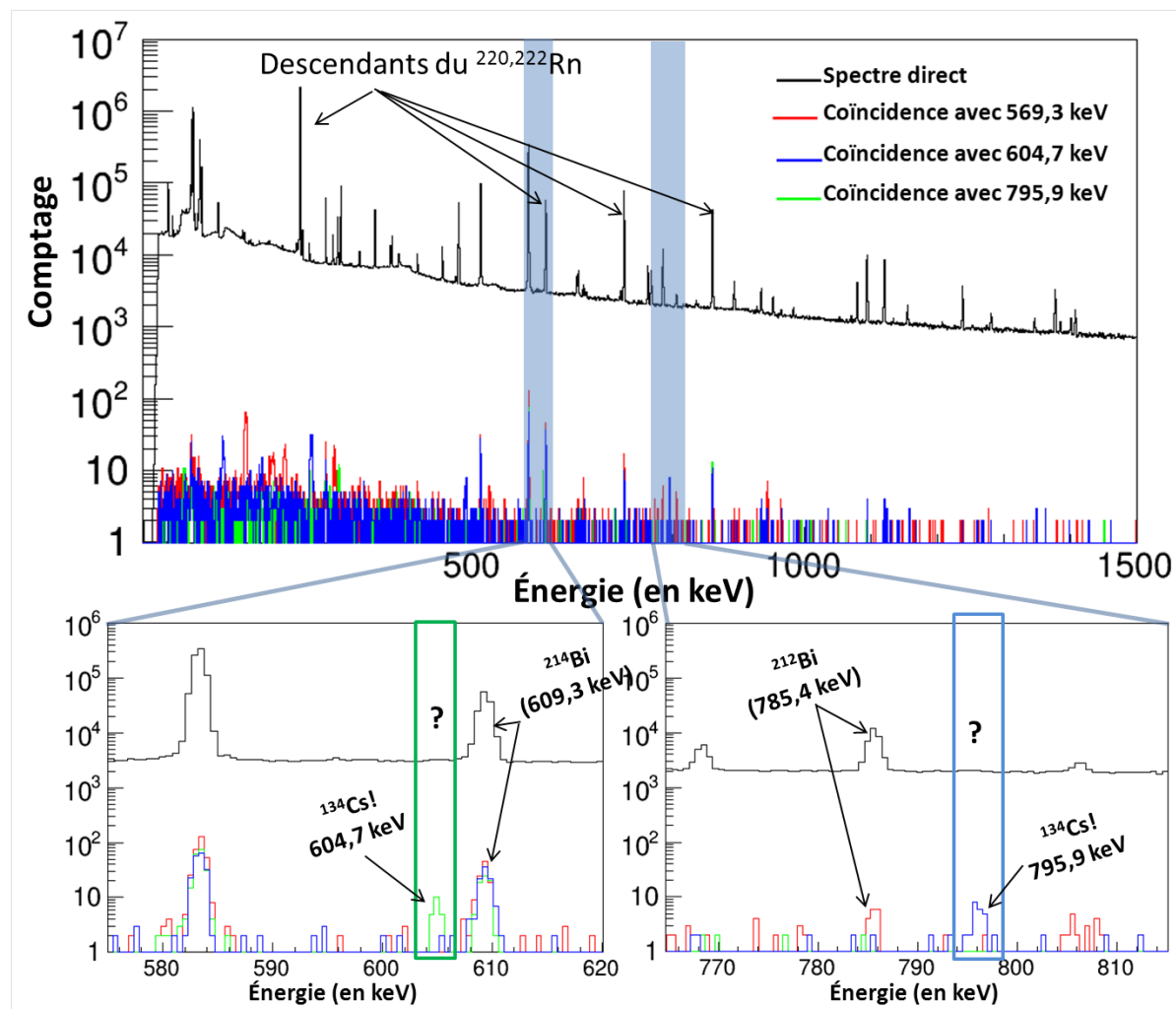


$\gamma_{1,0}$ ,  $\gamma_{3,1}$  du  $^{134}\text{Cs}$ , l'émission à 180 degrés des deux photons est favorisée (d'environ 12 %). Et ainsi,  $\epsilon_{\gamma_{1,0}/\gamma_{3,1}} > \epsilon_{\gamma_{1,0}} \times \epsilon_{\gamma_{3,1}}$ . Ce qui est bien cohérent avec l'écart constaté des rendements de détection du  $^{134}\text{Cs}$  calculés et fournis dans le tableau 3.8.



**Figure 3.21** – Spectres à deux dimensions d'une mesure pendant 4100 minutes en coïncidences photon/photon d'un échantillon de  $^{134}\text{Cs}$  (13 mBq) placé dans un filtre frais de prélèvement des particules atmosphérique (type 3M).

La figure 3.21 donne le spectre de coïncidences photon/photon de la mesure de 13 mBq de  $^{134}\text{Cs}$  placé dans un filtre compressé frais 3M de prélèvement des particules atmosphériques. Ce filtre contient donc une activité importante en  $^{214,212}\text{Pb}$ ,  $^{214,212}\text{Bi}$  et  $^{208}\text{Tl}$ , tous descendants des  $^{220,222}\text{Rn}$ . Le spectre de coïncidences est complexe et est dominé par des événements attribuables à ces descendants du radon. En revanche, le zoom présenté sur la partie inférieure de la figure 3.21 montre bien un comptage non négligeable dans la ROI de coïncidences  $\gamma_{3,1}/\gamma_{1,0}$  du  $^{134}\text{Cs}$ . Sur ce zoom, on observe aussi clairement les lignes d'événements attribuables aux coïncidences  $\gamma/\gamma_{1,0}$  et  $\gamma_{5,1}/\gamma_{1,0}$  du  $^{214}\text{Bi}$ ,  $\gamma_{2,1}/\gamma$  du  $^{212}\text{Bi}$  et



**Figure 3.22** – Spectres à une dimension d'une mesure pendant 4100 minutes en direct ou en coïncidences d'un échantillon de  $^{134}\text{Cs}$  (13 mBq) placé dans un filtre frais de prélèvement des particules atmosphérique (type 3M).

$\gamma/\gamma_{2,1}$  du  $^{208}\text{Tl}$ .

La figure 3.22 montre le spectre direct (par le détecteur ATHOS, courbe en noir) et les spectres des photons mesurés par le détecteur ATHOS en coïncidences avec  $\gamma_{5,3}$  (à 569,3 keV, spectre en rouge),  $\gamma_{1,0}$  (à 604,7 keV, spectre en bleu) ou  $\gamma_{3,1}$  (à 795,9 keV, spectre en vert). Aucun comptage attribuable au  $^{134}\text{Cs}$  n'est visible dans le spectre en mesure directe. En revanche, on observe très clairement (cf. zoom sur dans la partie inférieure de la figure 3.22) un pic  $\gamma$  à 604,7 keV (correspondant au photon  $\gamma_{1,0}$  du  $^{134}\text{Cs}$ ) dans le spectre vert et un pic  $\gamma$  à 795,9 keV (correspondant au photon  $\gamma_{3,1}$  du  $^{134}\text{Cs}$ ) dans le spectre bleu. Cependant, parce que la probabilité des événements associés est trop faible, aucun pic attribuable aux photons  $\gamma_{1,0}$  ou  $\gamma_{3,1}$  du  $^{134}\text{Cs}$  n'est observé dans le spectre rouge. De manière générale, on observe que pour les spectres de coïncidence (spectres en rouge, bleu ou vert), la ligne de base environ deux milles fois inférieure à celle de la mesure en direct (spectre en noir). Ces observations montrent bien que dans le cas d'un échantillon actif, la sensibilité d'une mesure par coïncidences est meilleure que celle d'une mesure en



direct.

En notant :

- $AMD_{\gamma_{1,0}}(^{134}\text{Cs})$  l'activité minimale détectable en mesure directe de l'émission  $\gamma_{1,0}$  du  $^{134}\text{Cs}$ .
- $AMD_{\gamma_{1,0}/\gamma_{3,1}}(^{134}\text{Cs})$  l'activité minimale détectable en mesure de coïncidences  $\gamma_{1,0}/\gamma_{3,1}$  du  $^{134}\text{Cs}$ .

On a :

$$\frac{AMD_{\gamma_{1,0}}(^{134}\text{Cs})}{AMD_{\gamma_{1,0}/\gamma_{3,1}}(^{134}\text{Cs})} = \frac{L_D(ROI_{\gamma_{1,0}}(^{134}\text{Cs}))}{L_D(ROI_{\gamma_{1,0}/\gamma_{3,1}}(^{134}\text{Cs}))} \times \frac{\epsilon_{\gamma_{1,0}/\gamma_{3,1}}(^{134}\text{Cs})}{\epsilon_{\gamma_{1,0}}(^{134}\text{Cs})}. \quad (3.53)$$

en sachant que :

$$P_{\gamma_{1,0}/\gamma_{3,1}}(^{134}\text{Cs}) = P_{\gamma_{1,0}}(^{134}\text{Cs})P_{\gamma_{3,1}|\gamma_{1,0}}(^{134}\text{Cs}), \quad (3.54)$$

et en prenant en compte l'équation 3.51, l'équation 3.53 se simplifie en :

$$\frac{AMD_{\gamma_{1,0}}(^{134}\text{Cs})}{AMD_{\gamma_{1,0}/\gamma_{3,1}}(^{134}\text{Cs})} = \frac{L_D(ROI_{\gamma_{1,0}}(^{134}\text{Cs}))}{L_D(ROI_{\gamma_{1,0}/\gamma_{3,1}}(^{134}\text{Cs}))} \times \epsilon_{\gamma_{3,1}}P_{\gamma_{3,1}|\gamma_{1,0}}(^{134}\text{Cs}). \quad (3.55)$$

En estimant (de façon conservative) à 3 coups le comptage du bruit blanc de mesure dans  $ROI_{\gamma_{1,0}}(^{134}\text{Cs})$  et à 22000 coups celui dans  $ROI_{\gamma_{1,0}/\gamma_{3,1}}(^{134}\text{Cs})$ , on obtient que :

- $L_D(ROI_{\gamma_{1,0}}(^{134}\text{Cs})) \simeq 700$  coups en utilisant l'équation 1.17 avec un risque  $\alpha$  de 5 % (cf. chapitre 1).
- $L_D(ROI_{\gamma_{1,0}/\gamma_{3,1}}(^{134}\text{Cs})) \simeq 11$  coups en résolvant les inéquations 1.21 et 1.23 (cf. chapitre 1).

De plus, à partir de la mesure présentée en figure 3.20, Le rendement de détection d'absorption totale de  $\gamma_{3,1}$  ( $\epsilon_{\gamma_{3,1}}$ ) par le détecteur ARAMIS a été calculé et est estimé à 6,0 %. Ainsi :

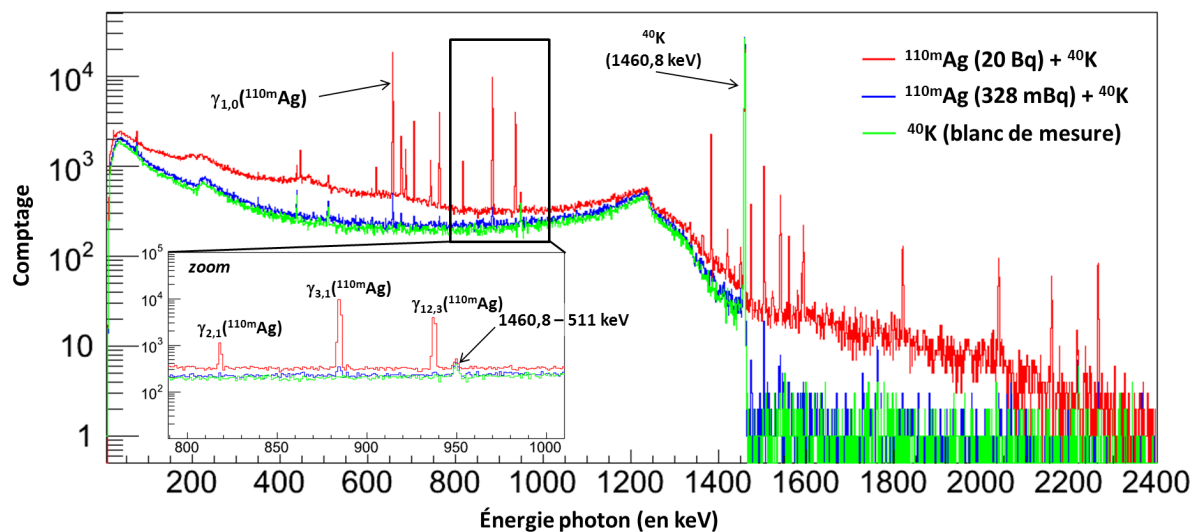
$$\frac{AMD_{\gamma_{1,0}}(^{134}\text{Cs})}{AMD_{\gamma_{1,0}/\gamma_{3,1}}(^{134}\text{Cs})} \approx 3,8. \quad (3.56)$$

Ceci montre que l'activité minimale détectable est environ 4 fois meilleure en mesure par coïncidence qu'en mesure directe. Les mesures par coïncidence ont donc permis de préserver une bonne sensibilité du spectromètre, malgré la forte activité de l'échantillon.

### 3.4 Autres mesures de coïncidences : études et applications

Les mesures en coïncidences photon/photon permettent donc de gagner en sensibilité pour la détection dans un échantillon actif des traces de certains radionucléides (ceux dont le schéma de décroissance s'y prête). Dans sa globalité, le spectromètre GAMMA<sup>3</sup> fait intervenir trois détecteurs au germanium et deux détecteurs au silicium. D'autres mesures de coïncidences entre ces détecteurs sont donc envisageables et sont étudiées dans cette section. En particulier, trois autres types de mesures en coïncidences sont présentées : les coïncidences à trois photons (en section 3.4.1), les coïncidences X/ $\gamma$  (en section 3.4.2) et les coïncidences électron/électron (en section 3.4.3).

### 3.4.1 À trois photons : le $^{110m}\text{Ag}$



**Figure 3.23** – Spectres d’émission de photons mesurés par le détecteur PORTHOS d’échantillons artificiels d’un mélange  $^{40}\text{K}$  et  $^{110m}\text{Ag}$  dans de l’eau en géométrie SG500. Les trois échantillons présentés ont une quantité identique de  $^{40}\text{K}$  (correspondant à 34 g de KOH). Le spectre sans  $^{110m}\text{Ag}$  est en vert (durée d’acquisition : 80700 s), le spectre en bleu correspond à une activité en  $^{110m}\text{Ag}$  de 328 mBq (durée d’acquisition : 88100 s), et le spectre en rouge correspond à un échantillon dont l’activité en  $^{110m}\text{Ag}$  est de 20 Bq (durée d’acquisition : 83700 s).

La configuration de mesure à trois détecteurs (ATHOS, PORTHOS et ARAMIS) permet la mesure par coïncidences à trois photons d’un échantillon de large volume de type SG500. Le bruit de fond d’une telle mesure est extrêmement bas, comme montré précédemment sur le spectre du bas de la figure 3.16. En revanche, les radionucléides d’intérêts pour le TICE émettant trois photons (dont les probabilités d’émission sont supérieures à 10 %) en cascade sont peu nombreux. On retiendra en particulier  $^{110m}\text{Ag}$ , qui émet en cascade (cf. Chisté *et al.* (2014))  $\gamma_{12,3}$  (937,5 keV),  $\gamma_{3,1}$  (884,7 keV) et  $\gamma_{1,0}$  (657,8 keV). La probabilité d’émission de cette cascade est :

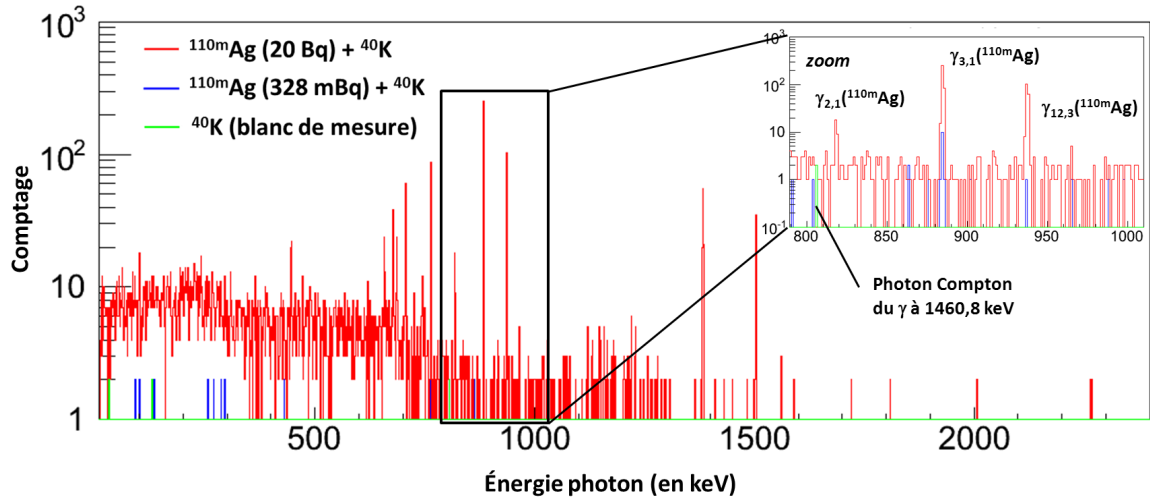
$$P_{\gamma_{12,3}/\gamma_{3,1}/\gamma_{1,0}}(^{110m}\text{Ag}) = P_{\gamma_{12,3}}(^{110m}\text{Ag}) \times P_{\gamma_{3,1}|\gamma_{12,3}}(^{110m}\text{Ag}) \times P_{\gamma_{1,0}|\gamma_{12,3}/\gamma_{3,1}}(^{110m}\text{Ag}). \quad (3.57)$$

Or, au vu du schéma de  $^{110m}\text{Ag}$ , l’émission du photon  $\gamma_{3,1}$  est le mécanisme le plus favorable pour dépeupler le niveau excité 3. De même, l’émission de photon  $\gamma_{1,0}$  est faiblement convertie. Ainsi, on a :  $P_{\gamma_{1,0}|\gamma_{12,3}/\gamma_{3,1}}(^{110m}\text{Ag}) = 99,68 \%$  et  $P_{\gamma_{3,1}|\gamma_{12,3}}(^{110m}\text{Ag}) = 99,87 \%$ . Et donc  $P_{\gamma_{12,3}/\gamma_{3,1}/\gamma_{1,0}}(^{110m}\text{Ag}) = 34,35 \%$ .

Un série de 6 échantillons a été produite en mélangeant jusqu’à un volume d’eau de 500 mL différentes quantités d’ $^{110m}\text{Ag}$  avec du KOH (62,2 g). Le but du rajout de KOH était d’ajouter une forte activité de  $^{40}\text{K}$  (dont l’isotopie naturelle est de  $1,2 \cdot 10^{-2} \%$ ) dans les échantillons. Le  $^{40}\text{K}$  se désintègre en partie par capture électronique suivie de l’émission d’un photon  $\gamma$  de 1460,8 keV. Le spectre vert de la figure 3.23 correspond à la mesure d’un

échantillon contenant uniquement du  $^{40}\text{K}$ . Comme illustré par le spectre rouge en figure 3.23, les trois photons  $\gamma_{12,3}$ ,  $\gamma_{3,1}$  et  $\gamma_{1,0}$  de l' $^{110\text{m}}\text{Ag}$  sont superposés au fond Compton du  $\gamma_{1,0}(^{40}\text{K})$ .

L'ajout de KOH a été trop faible pour empêcher la mesure en direct de 328 mBq d' $^{110\text{m}}\text{Ag}$  (correspondant à l'échantillon le moins actif), puisque le pic  $\gamma_{1,0}$  (657,8 keV) est clairement visible sur le spectre correspondant (cf. spectre bleu sur la figure 3.23). De plus la probabilité de détecter en géométrie SG500 trois photons simultanés entre 600 et 1000 keV est trop faible afin de mesurer en coïncidence 20 Bq de  $^{110\text{m}}\text{Ag}$  (correspondant à l'échantillon le plus actif produit). Néanmoins, une configuration de mesure à trois détecteurs est présentée en figure 3.24 : les signaux des mesures provenant des détecteurs ATHOS et ARAMIS sont sommés et mis en coïncidences avec ceux du détecteur PORTHOS. Cette configuration de mesure est dénommée "ATHOS+ARAMIS/PORTHOS", et correspond à une configuration de mesure en coïncidences doubles.



**Figure 3.24** – Spectres des photons mesurés par le détecteur PORTHOS (avec veto cosmique) en coïncidences avec un photon à 657,8 keV mesuré par les détecteurs ATHOS ou ARAMIS, d'échantillons artificiels d'un mélange  $^{40}\text{K}$  et  $^{110\text{m}}\text{Ag}$  dans de l'eau en géométrie SG500. Les trois échantillons présentés contiennent une quantité identique de  $^{40}\text{K}$  (correspondant à 34 g de KOH). Le spectre sans  $^{110\text{m}}\text{Ag}$  ajouté est en vert (durée d'acquisition : 80700 s), le spectre en bleu correspond à l'échantillon dont l'activité en  $^{110\text{m}}\text{Ag}$  est de 328 mBq (durée d'acquisition : 88100 s), et le spectre en rouge correspond à l'échantillon dont l'activité en  $^{110\text{m}}\text{Ag}$  est de 20 Bq (durée d'acquisition : 83700 s).

Les résultats des mesures en configuration ATHOS+ARAMIS/PORTHOS sont donnés en figure 3.24. Sur cette figure, le spectre des photons  $\gamma$  mesurés par le détecteur PORTHOS des événements de coïncidences  $\gamma_{1,0}(657,8 \text{ keV})/\gamma$  sont représentés. Le zoom de la région entre 790 et 1010 keV est montré dans l'encart en haut à droite. Sur cette figure, le spectre en vert correspond à l'échantillon sans  $^{110\text{m}}\text{Ag}$ . On remarque qu'il y a très peu d'événements dans ce spectre. Le seul pic observable correspond aux photons à 803 keV

(rétro-diffusé par effet Compton) du  $\gamma$  principal du  $^{40}\text{K}$ , puisque  $1460,8 - 803 = 657,8$  keV correspond bien à l'énergie des photons coïncidents avec ces événements. Pour ce qui est des spectres en rouge ou en bleu, ceux-ci correspondent aux échantillons contenant respectivement 328 mBq et 20 Bq d' $^{110\text{m}}\text{Ag}$ . Dans le spectre en rouge, les événements imputables aux photons émis par l' $^{110\text{m}}\text{Ag}$  sont clairement observés et dominent l'ensemble du spectre. Sur le spectre bleu, le pic de photon  $\gamma_{3,1} (^{110\text{m}}\text{Ag})$  est lui aussi visible. Puisque dans ce cas le bruit de fond est très faible, le rapport signal sur bruit de ce pic est considérablement augmenté par rapport à celui relevé pour le même échantillon en mesure direct (cf. spectre bleu en figure 3.23).

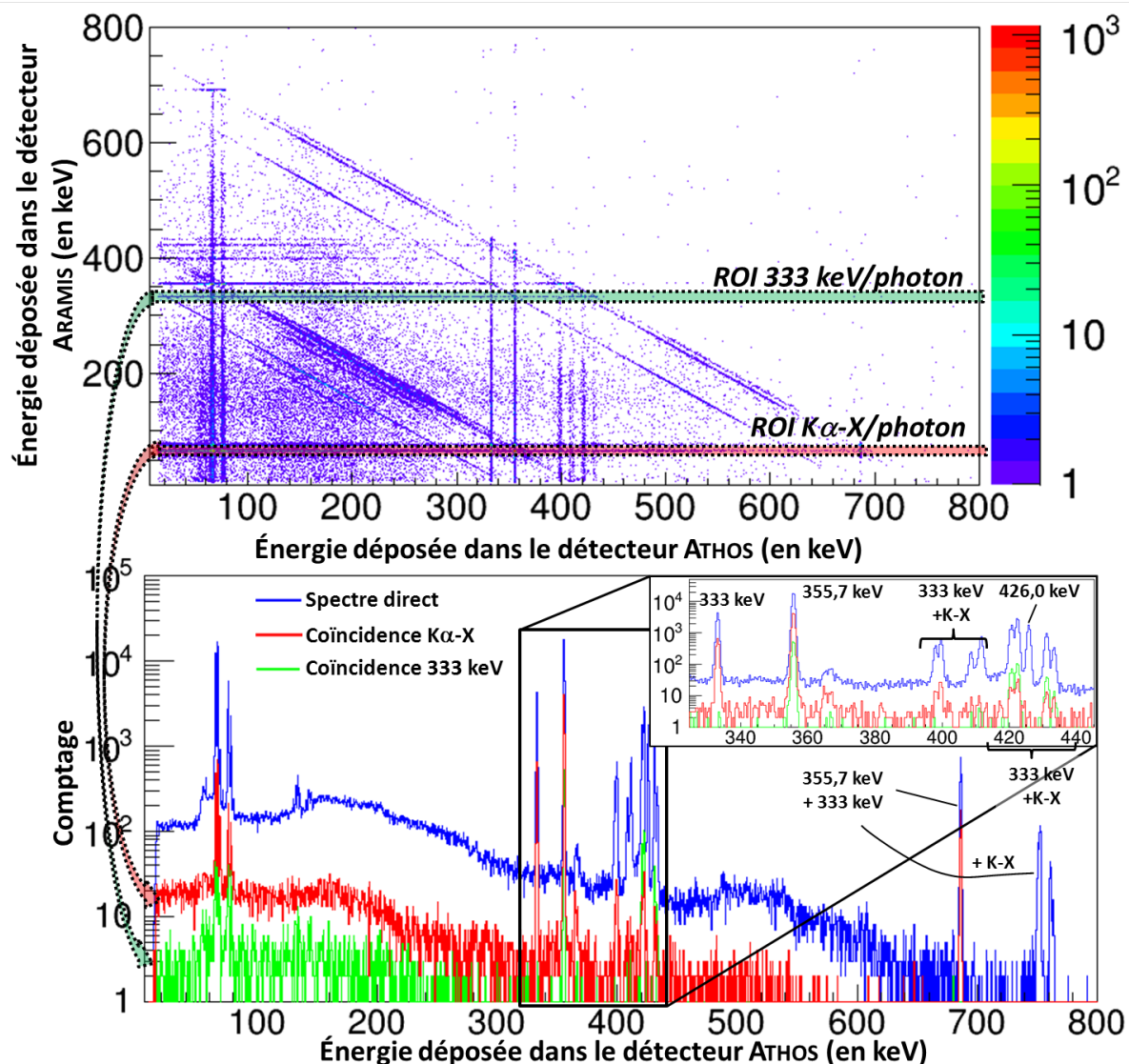
Concernant l'échantillon contenant 328 mBq d' $^{110\text{m}}\text{Ag}$ , le comptage net dans la *ROI* en mesure directe de  $\gamma_{1,0}$  est d'environ 400 coups pour un fond d'environ 1800 coups. Ainsi, pour faire disparaître les traces des 328 mBq de  $^{110\text{m}}\text{Ag}$  dans cet échantillon, il faut que le comptage net (ici 400) soit inférieur au  $S_D$  et donc augmenter le fond d'un facteur 16. Ainsi, il faudrait rajouter presque 1 kg de KOH à cet échantillon pour empêcher la mesure par spectrométrie directe  $^{110\text{m}}\text{Ag}$ , sans pour autant altérer sa mesure par coïncidences  $\gamma_{1,0}(657,8 \text{ keV})/\gamma$ . Mais la dissolution de 1 kg de KOH dans 500 mL d'eau n'est pas réaliste. Il faut donc revoir la méthode de fabrication de ces échantillons pour d'éventuelles futures études.

### 3.4.2 Coïncidences $\text{X}/\gamma$

Certains radionucléides d'intérêt du TICE se désintègrent par capture électronique (par exemple le  $^{196}\text{Au}$ ,  $^{133}\text{Ba}$ ,  $^{57}\text{Co}$ ,  $^{51}\text{Cr}$ , ou encore  $^{152}\text{Eu}$ ) ou ont un schéma de désintégration permettant l'émission simultanée de photons X (suite à une conversion interne) et  $\gamma$  (par exemple les  $^{125}\text{Sb}$ ,  $^{129\text{m}}\text{Te}$ ,  $^{132}\text{Te}$ ,  $^{143}\text{Ce}$ ). Dans ce cas, la détection par coïncidences  $\text{X}/\gamma$  de ce radionucléide est plus favorable qu'une détection par coïncidences  $\gamma/\gamma$ . En effet dans ce cas les événements de coïncidences  $\text{X}/\gamma$  bénéficient : (i) de probabilités d'émissions des photons X élevées, et (ii) de meilleurs rendements d'absorption totale des détecteurs BEGe5030P aux énergies de ces photons X.

Ceci est illustré brièvement en figure 3.25. Cette figure présente la mesure en coïncidences ou en direct d'une source de 460 Bq de  $^{196}\text{Au}$  placée entre les détecteurs ATHOS et ARAMIS pendant 20 min. La partie supérieure de la figure montre le spectre en coïncidences photon/photon de cette mesure. La partie inférieure de la figure présente les spectres à une dimension des photons mesurés par le détecteur ATHOS en direct (en bleu) ou en coïncidence avec un photon  $\text{K}\alpha\text{-X}$  (en rouge) ou un photon à 333 keV (en vert) de  $^{196}\text{Au}$ . Le spectre en coïncidences photon/photon permet d'observer la signature caractéristique de  $^{196}\text{Au}$  dans un spectre à deux dimensions. Les *ROI* ayant servi à tracer les spectres présentés sur la partie inférieure de la figure sont illustrées selon le même code couleur (vert ou rouge pour les événements de coïncidences 333 keV/photon ou  $\text{K}\alpha\text{-X}/\text{photon}$ ).

La partie inférieure de la figure 3.25 permet d'illustrer que pour  $^{196}\text{Au}$ , les événements



**Figure 3.25** – Mesure en coïncidence photon/photon ( $\gamma/\gamma$  et  $X/\gamma$ ) d'une source (460 Bq) de  $^{196}\text{Au}$  pendant 20 min. En haut : spectre de coïncidence à deux dimensions, sur lequel les ROI de coïncidence  $\gamma/\gamma$  (en vert) ou  $X/\gamma$  (en rouge) sont indiquées. En bas, comparaison des photons mesurés par le détecteur ATHOS : en direct (courbe bleue), en coïncidence avec un photon  $K\alpha$ -X émis par l' $^{196}\text{Au}$  (en rouge) ou en coïncidence avec un photon  $\gamma$  à 333 keV de l' $^{196}\text{Au}$  (en vert). L'encart en haut à droite de ces spectres correspond au zoom sur la région 325-445 keV en énergie photon. Les principales raies observables dans ces spectres sont montrées dans cet encart.

de coïncidences  $K\alpha$ -X/photon (spectre rouge) ont un meilleur rendement et sont plus diversifiées que les événements de coïncidences  $\gamma$ /photon (spectre bleu). En effet le spectre rouge est plus "riche" car on y observe une plus grande variété de pics, par exemple on observe le pic de sommation de photons  $\gamma$  à 688,7 keV (correspondant à la sommation des photons de 333 keV avec ceux de 355,7 keV) qui n'est pas visible dans le spectre vert. De plus, les événements de coïncidences  $K\alpha$ -X/photon ont un meilleur rendement car on

mesure :

$$\frac{\epsilon_{K\alpha-X/\gamma(355,6 \text{ keV})}({}^{196}\text{Au})}{\epsilon_{\gamma(355,6 \text{ keV})}({}^{196}\text{Au})} = 0,23 ;$$

contre :

$$\frac{\epsilon_{\gamma(333 \text{ keV})/\gamma(355,6 \text{ keV})}({}^{196}\text{Au})}{\epsilon_{\gamma(355,6 \text{ keV})}({}^{196}\text{Au})} = 0,029.$$

Ce qui montre que pour  ${}^{196}\text{Au}$ , le rendement en coïncidence  $K\alpha-X/\gamma$  est environ 8 fois meilleur que le rendement en coïncidence  $\gamma/\gamma$ . Ceci montre bien que les émetteurs ( $\gamma-X$ ) sont plus favorables à une mesure en coïncidence photon/photon.

### 3.4.3 Coïncidences électron/électron

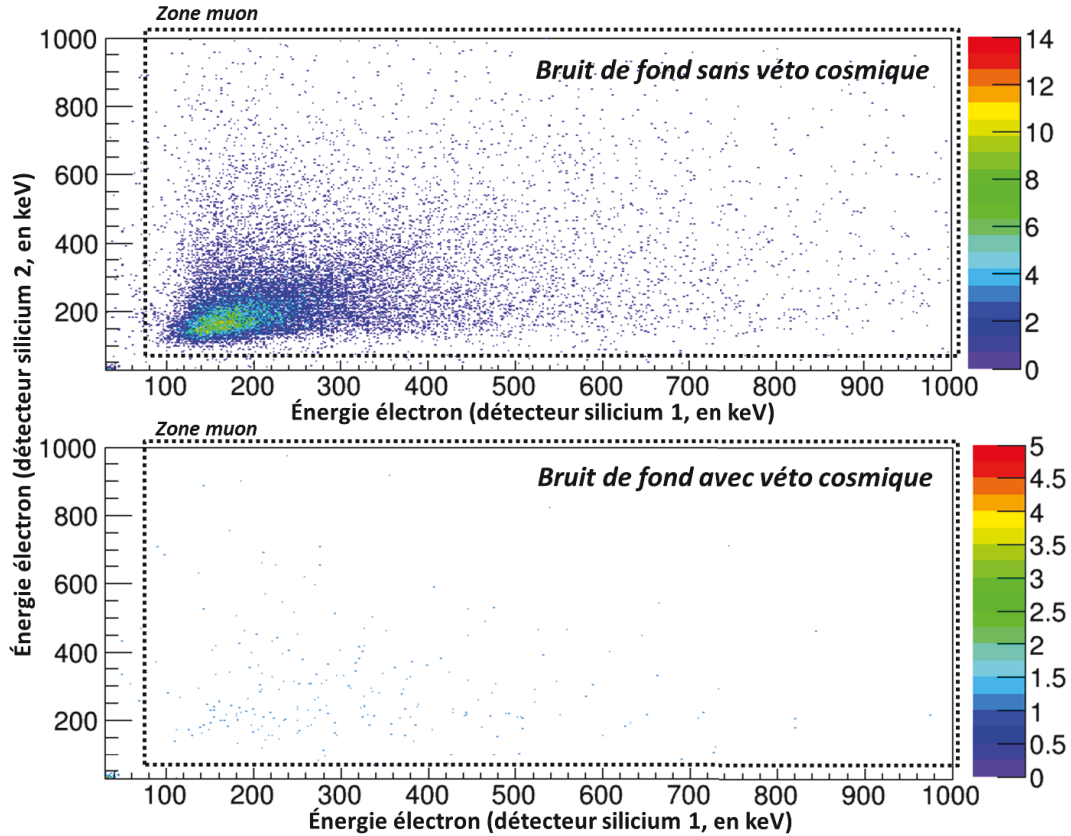
Des études supplémentaires sur le détecteur PIPSBox ont été menées et sont brièvement présentées dans cette partie. Les applications qui peuvent en découler sont abordées au cas par cas. Tels que présentés jusqu'ici, les deux détecteurs silicium de la PIPSBox sont utilisés en "sommation d'événement". Dans ce cas, tous les événements mesurés par chacun des détecteurs au silicium sont comptés indépendamment. En revanche, il est aussi possible d'utiliser ces détecteurs :

- en coïncidence. On peut alors étudier les événements de coïncidences électrons/électrons mesurés par le détecteur PIPSBox, tels qu'illustré dans les figures 3.26 (pour les bruits de fond) ou 3.27 (pour la mesure de radioxénon).
- en "sommation d'énergie". Dans ce cas, si un événement est détecté simultanément dans les deux détecteurs silicium, l'énergie associée à cet événement est la somme des énergies déposées dans chacun d'eux.
- ou encore en anti-coïncidence avec un détecteur HPGe. Ainsi dans ce cas, un événement de coïncidence photon/électron est considéré uniquement si un seul des deux détecteurs silicium a participé à la mesure de cet événement.

Cette partie aborde deux aspects des mesures en coïncidences électron/électron : le bruit de fond de ces mesures, et la mesure des radioxénons. Le spectre de bruit de fond sur une mesure de 48,9 heures des coïncidences électron/électron par le détecteur PIPSBox (placé dans le spectromètre GAMMA<sup>3</sup>) est donné en figure 3.26. La mesure pendant 19,4 heures d'un étalon contenant les 4 radioxénons d'intérêt pour le TICE est montrée en figure 3.27.

#### Mesure de bruit de fond

La figure 3.26 présente le spectre de bruit de fond du détecteur PIPSBox en mesure électron/électron dans deux cas de figure : sans ou avec veto cosmique. Le bruit de fond présenté dans la partie supérieure de la figure 3.26 est dominé par un ensemble d'événements répartis entre 80 et 1000 keV. Les simulations Monte-Carlo du dépôt d'énergie simultané dans les détecteurs au silicium d'un flux isotrope de muons ( $\mu^-$ ) à différentes énergies (300 MeV, 3 GeV ou 30 GeV) ont été effectuées. Elles ont montrées que la signature du flux de muons cosmiques dans un spectre de coïncidences électron/électron du



**Figure 3.26** – Spectres d'une mesure de bruit de fond de 48,9 heures en coïncidence électron/électron du détecteur PIPSBox sans (spectre du haut) et avec (spectre du bas) veto cosmique.

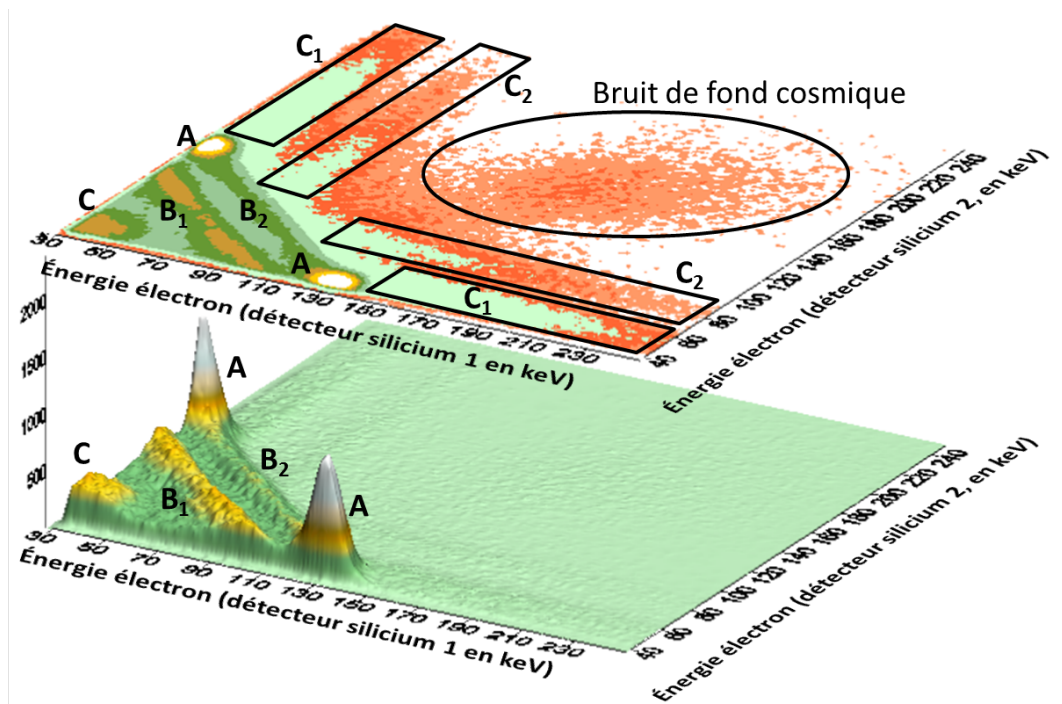
détecteur PIPSBox correspondait bien aux événements observés dans le bruit de fond. De plus, le taux de comptage surfacique (*i.e.* normalisé par les 1200 mm<sup>2</sup> de surfaces actives des détecteurs au silicium) de la "zone muon" (telle que définie sur les spectres de la figure 3.26) mesuré est de 113 s<sup>-1</sup>/m<sup>2</sup>. Ce taux de comptage surfacique est très proche du flux azimuthal moyen de muons d'environ 100 muons/s/m<sup>2</sup>. En sachant que cette mesure a été effectuée dans le spectromètre GAMMA<sup>3</sup>, le flux de particules (autres que les muons cosmiques) pouvant générer un bruit de fond radiologique (photons, électrons, neutrons) au niveau de la PIPSBox est très faible. Enfin, la mesure du bruit de fond avec veto cosmique (cf. partie inférieure de la figure 3.26) a un comptage surfacique dans la "zone muon" fortement réduit de 1,1 s<sup>-1</sup>/m<sup>2</sup>. Ces arguments permettent d'affirmer que le bruit de fond en coïncidences électron/électron du détecteur PIPSBox dans le spectromètre GAMMA<sup>3</sup> est causé dans la ROI [80-1000]/[80-1000] (en keV) par le dépôt d'énergie direct et simultané des muons cosmiques dans les deux détecteurs au silicium.

De plus, la mesure du ratio entre le taux de comptage surfacique calculé dans la "zone muon" dans les spectres avec ou sous veto cosmique permet d'estimer l'efficacité de celui-ci. Le détecteur PIPSBox était placé à l'horizontale, au centre et à mi-hauteur de la chambre de mesure du spectromètre GAMMA<sup>3</sup>, c'est donc la plaque scintillante placée au-dessus du blindage qui a été évaluée. Et son efficacité à éliminer les événements imputables aux



muons d'origine cosmique dans une mesure de radioactivité est estimée à 99,04 %. Le détecteur PIPSBox peut ainsi être utilisé pour évaluer l'efficacité d'un système de veto cosmique.

### Mesure de radionucléides



**Figure 3.27** – Spectres d'une mesure en coïncidences électron/électron du détecteur PIPSBox pendant 19,4 heures d'un étalon de radionucléides ( $13,3 \text{ Bq}$  de  $^{133}\text{Xe}$ ,  $33,6 \text{ Bq}$  de  $^{131m}\text{Xe}$ ,  $0,31 \text{ Bq}$  de  $^{133m}\text{Xe}$  et  $0,05 \text{ Bq}$  de  $^{135}\text{Xe}$ ).

Les mesures en coïncidences électron/électron des radionucléides ont été évoquées dans le chapitre 1 (cf. section 1.5.3), lors de l'étude des résultats de l'article Henning *et al.* (2012b). Lors des mesures en configuration HPGe/PIPSBox d'étalons de radionucléide, il est aussi possible de relever les événements de coïncidences électron/électron. Le spectre issu d'une telle mesure est montré en figure 3.27. Les événements générés par le passage des muons cosmiques qui ont été décrits précédemment sont clairement visibles et sont entourés dans la partie supérieure de la figure. L'étalon a été mesuré pendant 19,4 heures et contenait  $13,3 \text{ Bq}$  de  $^{133}\text{Xe}$ ,  $33,6 \text{ Bq}$  de  $^{131m}\text{Xe}$ ,  $0,31 \text{ Bq}$  de  $^{133m}\text{Xe}$  et  $0,05 \text{ Bq}$  de  $^{135}\text{Xe}$ . Il a été montré dans le chapitre 2 que pour un détecteur au silicium, les photons de basses énergies ont un rendement d'absorption totale non négligeable (cf. section 2.6.2). Ainsi dans la figure 3.27 on observe : (i) les événements de coïncidences K-X/K-CE (étiquetés "A") du  $^{131m}\text{Xe}$ , et (ii) les événements de coïncidences K-X/K-CE+ $\beta$  (étiquetés "C" et "C<sub>1</sub>") et  $\gamma_{1,0}/\beta$  (étiquetés "C<sub>2</sub>") du  $^{133}\text{Xe}$ . La résolution en énergie des détecteurs au silicium ne permet pas de distinguer les photons  $K\alpha$ ,  $K\beta'_1$  ou  $K\beta'_2$ -X. On note alors simplement K-X un événement ayant fait intervenir un photon de ces photons X.



En revanche, la faible activité en  $^{135}\text{Xe}$  de l'étalon et le rendement de détection des photons  $\gamma$  (émis par celui-ci) ne permet pas de l'observer sur cette mesure de coïncidences électron/électron. Les événements de coïncidences K-X/K-CE du  $^{133m}\text{Xe}$  ne sont aussi pas visibles car d'une part ils sont superposés aux événements K-X/ $\beta$  du  $^{133}\text{Xe}$  (cf. zones "C1" sur la figure). D'autre part l'activité en  $^{133m}\text{Xe}$  de l'étalon est trop faible par rapport à celle en  $^{133}\text{Xe}$  pour qu'un pic K-X/K-CE( $^{133m}\text{Xe}$ ) puisse émerger du fond K-X/ $\beta$ ( $^{133}\text{Xe}$ ).

Cette mesure confirme que :

- les seules mesures de coïncidences électron/électron ne permettent pas de détecter les radionucléides à l'échelle des traces.
- la séparation nette des événements de coïncidence K-X/K-CE( $^{131m,133m}\text{Xe}$ ) de ceux K-X/K-CE+ $\beta$ ( $^{133,135}\text{Xe}$ ) est nécessaire pour la mesure à l'échelle de traces des deux xénons métastables ( $^{131m,133m}\text{Xe}$ ). Ceci impose donc à la configuration de mesure choisie de distinguer clairement les photons  $K\alpha\text{-X}$ ( $^{131m,133m}\text{Xe}$ ) des photons  $K\alpha\text{-X}$ ( $^{133,135}\text{Xe}$ ). Ceci est possible dans la section 3.2 grâce à l'utilisation de la technologie BEGe5030P pour la mesure des photons.

Deux zones d'événements, notées  $B_1$  et  $B_2$ , sont observés sur la figure 3.27 et sont particulièrement intéressantes. Les événements  $B_1$  correspondent aux électrons K-CE du  $^{131m}\text{Xe}$  qui déposent une partie de leur énergie dans un détecteur avant d'en ressortir et de déposer le reste de son énergie dans l'autre détecteur. Les événements  $B_2$  correspondent aux électrons L,M ou N-CE (ainsi que des électrons K-CE en sommation avec le photon K-X associé) ayant le même comportement. Ces événements peuvent être caractérisés comme des "rebonds" (ou de la diffusion) d'électron. Parce que le spectre d'énergie des électrons d'une émission  $\beta^-$  n'est pas mono-énergétique, le rebond d'électron  $\beta^-$  n'est pas autant visible dans le spectre présenté. Mais il est très fortement probable que les électrons  $\beta^-$  sont aussi capable de rebondir entre les deux détecteurs silicium.

### Application aux coïncidences photon/électron

Ainsi, lors d'une mesure en configuration HPGe/PIPSBox, il est possible pour les radionucléides métastables de réduire les interférences dues aux autres radionucléides en considérant une coïncidence à trois détecteurs (deux détecteurs au silicium et un détecteur au germanium). Dans ce cas, les radionucléides métastables sont mesurés par coïncidences  $K\alpha\text{-X}/K\text{-CE}$  lorsque les deux détecteurs au silicium fonctionnent en anti-coïncidence.

# Conclusion et perspectives

## Conclusion

Dans le cadre de la vérification du Traité d'Interdiction Complète des Essais nucléaires (TICE), la mesure des traces de produits de fission et d'activation dans l'environnement est fondamentale. Ces mesures sont les uniques indicateurs du caractère nucléaire d'une explosion. Elles se doivent d'être extrêmement fiables tout en étant très sensibles.

Pour améliorer ses capacités d'analyse le CEA/DAM-Ile de France s'est équipé d'un nouveau spectromètre de surface dédié à la mesure des traces de produits de fission et d'activation. Ce spectromètre, baptisé GAMMA<sup>3</sup>, est équipé de trois détecteurs au germanium et d'un blindage optimisé. Ce blindage est constitué : (i) de composants passifs, 3 couches de plombs différentes pour une épaisseur totale de 12 cm et une couche de 5 cm d'épaisseur de polyéthylène boré; et (ii) de composants actifs, injection d'azote pur (à 400 L/h) et système de veto cosmique. Il permet de réduire le taux de comptage intégral de bruit de fond radiologique à  $3,1 \text{ min}^{-1}$  (sur la gamme 20-2500 keV d'énergie photon) contre 40 à  $50 \text{ min}^{-1}$  pour un blindage classique. L'utilisation de trois détecteurs au germanium permet d'effectuer pour différentes géométries standardisées des mesures à haute résolution en énergie et à haut rendement de détection. Les activités minimales détectables des produits de fission et d'activation pour ce spectromètre sont inégalées (pour un laboratoire de surface). On obtient par exemple une activité minimale détectable (en américium-241 pour une acquisition de 480000 s) de 0,9 mBq lors d'une mesure de filtre compressé de prélèvement des particules atmosphériques ou de 3,7 mBq pour une mesure d'échantillon d'eau de grand volume (500 mL), contre respectivement 4 et 16 mBq pour les systèmes conventionnels.

Le prélèvement et la mesure des traces de gaz nobles radioactifs dispersés dans l'atmosphère, suite à un essai nucléaire, nécessitent un traitement particulier. Afin d'améliorer la fiabilité et la précision de ces mesures, une cellule de mesure de gaz a été équipée de deux détecteurs au silicium. Couplée au spectromètre GAMMA<sup>3</sup>, cette cellule (baptisée détecteur PIPSTBox) permet d'effectuer des mesures en coïncidences photon/électron à haute résolution en énergie. Le taux de comptage intégral du bruit de fond associé à ces mesures est très bas, avec environ  $3,6 \cdot 10^{-2} \text{ min}^{-1}$  (sur la gamme 20-2500 keV d'énergie photon et 55-1000 keV d'énergie électron). Les interférences entre radio-isotopes du xénon ainsi que les interférences dues aux descendants du radon ( $^{214}\text{Pb}$  et  $^{214}\text{Bi}$ ) lors d'une mesure de coïncidences photon/électron ont aussi été étudiées. Il est ainsi montré que la

configuration HPGe/PIPSbox permet d'obtenir des performances inégalées de mesure de traces de radio-isotopes du xénon, avec un taux de faux positifs minimisé. En particulier, la haute résolution en énergie électron du détecteur PIPSBox permet une séparation nette des deux régions d'intérêts de coïncidence photon/électron des isotopes métastables  $^{131m}$  et  $^{133m}$  du xénon. Cette discrimination n'est pas possible avec les technologies à basse résolution en énergie telles que celles mises en œuvre sur les stations SAUNA ou ARIX.

Enfin, des mesures de coïncidences photon/photon sont présentées. Du fait d'un rendement de détection très faible, ces mesures de coïncidences ne sont pas adaptées à la mesure d'échantillons très faiblement actifs. En revanche, il a été montré que les mesures en coïncidences photon/photon s'avèrent particulièrement utiles pour la mesure de traces de radionucléides dans un échantillon actif. Ceci a été démontré en masquant des traces de  $^{134}\text{Cs}$  dans un filtre de prélèvement "frais" de particules atmosphériques. Les coïncidences photon/photon peuvent aussi être utiles pour lever l'ambiguïté d'attribution d'un pic, comme par exemple dans le cas d'une interférence en spectrométrie  $\gamma$  directe.

## Perspectives

D'autres améliorations du blindage du spectromètre GAMMA<sup>3</sup> sont prévues. En particulier, trois plaques scintillantes complémentaires vont être ajoutées au veto cosmique. L'objectif étant d'assurer avec ces nouvelles plaques une couverture totale du blindage et d'obtenir une meilleure efficacité du veto cosmique. En augmentant son efficacité à 99,9 % (contre 99,04 % actuellement), le système de veto cosmique permettrait de diminuer de 9 à 12 % le taux de comptage intégral du bruit de fond des détecteurs au germanium du spectromètre.

De plus des études seront menées afin de s'affranchir de certaines traces de radionucléides détectées dans le bruit de fond du spectromètre. Deux vis en acier standard sont utilisées dans le blindage pour fixer les couches de plomb FA et TFA. Ces vis seront à l'avenir remplacées afin de diminuer les traces de  $^{60}\text{Co}$ . Pour diminuer les traces de  $^{234}\text{Th}$  et  $^{235}\text{U}$ , on cherchera à mesurer d'autres résines époxy et durcisseurs.

Une cellule de gaz pour la mesure en spectrométrie  $\gamma$  directe des radioxénons équipée de deux fenêtres de carbone a été développée (illustrée en figure 2.21). Selon des premières estimations, son utilisation entre deux détecteurs au germanium dans le spectromètre GAMMA<sup>3</sup> permettrait d'atteindre les critères de certification du TICE pour la mesure des radioxénons sans avoir à utiliser le détecteur PIPSBox.

Le CEA développe une nouvelle version des stations SPALAX, appelée SPALAX Nouvelle Génération (ou SPALAX NG). Ces stations auront des meilleures performances en terme de sensibilité et de stabilité que les stations SPALAX actuelles. Par ces travaux de thèse il a été démontré que l'utilisation du détecteur PIPSBox couplé à un détecteur

HPGe permettait d'accroître la justesse à très bas niveau en activité des radionucléides. La validation expérimentale des coefficients d'interférence pour la mesure des radionucléides est en cours. *In fine* La technologie PIPSBox est destinée à équiper les futures stations SPALAX NG.

L'utilisation simultanée de plusieurs modules Pixie-4 et le développement des logiciels de traitement adaptés permettraient la mesure en configuration PIPSBox/ATHOS+ ARAMIS avec veto cosmique. L'utilisation de deux modules Pixie-4 est obligatoire car dans ce cas il faut effectuer l'acquisition simultanée de 5 signaux. Le détecteur PIPSBox serait inséré entre les deux détecteurs au germanium, ce qui devrait permettre de doubler le rendement de détection en coïncidences de chacun des radionucléides (cf. tableau 3.1). Les *AMD* estimées pour cette configuration sont entre 1,3 et 2 fois meilleures que les *AMD* données dans le tableau 3.3.

La mise en œuvre de techniques de mesure en coïncidences photon/photon ou photon/électron ouvre des perspectives diverses et variées. Les mesures présentées dans ce document ne représentent pas de façon exhaustive l'ensemble des combinaisons de coïncidences ou d'anti-coïncidences possibles entre les détecteurs. Par exemple, lors de la mesure de filtre comprimé 3M (de 5 cm de diamètre et 5 mm d'épaisseur) inséré entre deux détecteur HPGe, trois traitements peuvent être envisagés. Un premier traitement consisterait à sommer les spectres provenant des deux détecteurs (tel que présenté dans le chapitre 2 pour la mesure des filtres RASA). Néanmoins un second traitement plus "fin" consisterait à sommer directement l'énergie des signaux provenant des deux détecteurs. Les simulations montrent un gain entre 15 et 23 % des rendements de détection sur la gamme d'énergie 500-1800 keV par rapport au premier traitement. Ce gain est dû aux photons déposant de l'énergie dans les deux détecteurs par effet Compton. En effet dans ce cas, l'énergie somme mesurée pour ce photon correspond bien à son énergie initiale. Enfin, un dernier traitement consisterait à mettre en œuvre une mesure d'anti-coïncidences entre les deux détecteurs, correspondant à un pseudo-système anti-Compton. L'analyse selon l'un de ces trois traitements de la mesure d'un échantillon dépend des radionucléides que l'on cherche à détecter. Ainsi un radionucléide émettant plusieurs photons en cascade sera détecté plus facilement selon le premier traitement, un radionucléide dont le photon  $\gamma$  principal est d'énergie supérieure à 500 keV sera détecté plus facilement selon le deuxième traitement. Enfin, dans le cas d'un échantillon actif il se peut qu'un radionucléide dont le photon  $\gamma$  principal est de faible énergie ( $< 500$  keV) sera détecté plus facilement selon le troisième traitement.

Pour la mesure des filtres de prélèvement des particules atmosphériques, l'utilisation d'un détecteur PIPSBox modifié (en particulier équipé d'une fenêtre d'entrée très mince  $< 100 \mu\text{m}$ ) avec un détecteur HPGe permettrait la mise en place de coïncidence  $\gamma/\beta$ . Dans ce cas, l'idée est de faciliter le traitement des mesures en produisant deux spectres : un spectre photon seul et un spectre projeté de la coïncidence photon/électron. Ce qui permettrait d'augmenter la détectabilité de certains radionucléides (tels que le  $^{139}\text{Ce}$  ou le  $^{140}\text{La}$ ). En l'état, de telles configurations de mesures ne sont pas encore applicables car

le rendement de détection des électrons (émis depuis l'extérieur du détecteur PIPSBox) est trop faible.

# Publications

À ce jour ces travaux de thèse ont participé à la publication de 4 articles. L'ensemble de ces articles sont fournis en annexe D. Ces articles sont :

- Le Petit *et al.* (2013). Dans cet article, l'auteur a mis en place et analysé les mesures directes et en coïncidences photon/électron d'une configuration NaI(Tl)/PIPSBox. Trois mesures d'importance ont été effectuées : (i) mesure d'un étalon de  $^{131m}\text{Xe}$ , (ii) mesure d'un échantillon environnemental contenant les  $^{131m,133}\text{Xe}$ , et (iii) mesure de bruit de fond.
- Cagniant *et al.* (2013). Dans cet article, l'auteur a mis en place et analysé les mesures directes et en coïncidences photon/électron d'une configuration HPGe/PIPSBox. Ces mesures sont les équivalentes, à haute résolution en énergie photon, de celles présentées dans Le Petit *et al.* (2013). Ces mesures ont permis de donner la première estimation de rendement et d'activité minimum détectable au  $^{131m}\text{Xe}$  de la configuration HPGe/PIPSBox.
- Cagniant *et al.* (2014). Dans cet article, l'auteur a mis en place et analysé les mesures de  $^{127}\text{Xe}$  en coïncidences photon/électron d'une configuration HPGe/PIPSBox et NaI(Tl)/PIPSBox. Cet article a fait l'objet d'une collaboration avec l'OTICE, puisque le  $^{127}\text{Xe}$  est un candidat potentiel pour l'étalonnage et le contrôle des stations de prélèvement et de mesure des Gaz Nobles radioactifs du SSI. Les résultats de ces mesures à haute résolution en énergie électron et à haute (détecteur HPGe) ou basse (détecteur NaI(Tl)) résolution en énergie photon ont été comparés avec ceux obtenus par le système de détection SAUNA (basse résolution en énergie photon et électron).
- Cagniant *et al.* (2015). Dans cet article, l'auteur a analysé le bruit de fond du spectromètre GAMMA<sup>3</sup>. Cette analyse compare les performances de bruit de fond avec celles de systèmes existants. De plus, une première optimisation du système d'injection d'azote est présentée.



# Bibliographie

- ABERLIZOV : Primaryphotoncontinuumprofile.jpg, April 2008. URL [http://www.nucleonica.com/wiki/index.php.title=File%3APrimary\\_Photon\\_Continuum\\_Profile.jpg](http://www.nucleonica.com/wiki/index.php.title=File%3APrimary_Photon_Continuum_Profile.jpg).
- P. ACHIM, M. MONFORT, G. LE PETIT, P. GROSS, G. DOUYSET, T. TAFFARY, X. BLANCHARD et C. MOULIN : Analysis of radionuclide releases from the Fukushima Dai-Ici nuclear power plant accident part ii. *Pure and Applied Geophysics*, 171:645–667, 2014.
- S. AGOSTINELLI, J. ALLISON, K. AMAKO, J. APOSTOLAKIS, H. ARAUJO, P. ARCE, M. ASAI, D. AXEN, S. BANERJEE, G. BARRAND, F. BEHNER, L. BELLAGAMBA, J. BOUDREAU, L. BROGLIA, A. BRUNENGO, H. BURKHARDT, S. CHAUVIE, J. CHUMA, R. CHYTRACEK, G. COOPERMAN, G. COSMO, P. DEGTYARENKO, A. DELL'ACQUA, G. DEPAOLA, D. DIETRICH, R. ENAMI, A. FELICIELLO, C. FERGUSON, H. FESEFELDT, G. FOLGER, F. FOPPIANO, A. FORTI, S. GARELLI, S. GIANI, R. GIANNITRAPANI, D. GIBIN, J.J. GÓMEZ CADENAS, I. GONZÁLEZ, G. GRACIA ABRIL, G. GREENIAUS, W. GREINER, V. GRICHINE, A. GROSSHEIM, S. GUATELLI, P. GUMPLINGER, R. HAMAMATSU, K. HASHIMOTO, H. HASUI, A. HEIKKINEN, A. HOWARD, V. IVANCHENKO, A. JOHNSON, F.W. JONES, J. KALLENBACH, N. KANAYA, M. KAWABATA, Y. KAWABATA, M. KAWAGUTI, S. KELNER, P. KENT, A. KIMURA, T. KODAMA, R. KOKOULIN, M. KOSOV, H. KURASHIGE, E. LAMANNA, T. LAMPÉN, V. LARA, V. LEFEBURE, F. LEI, M. LIENDL, W. LOCKMAN, F. LONGO, S. MAGNI, M. MAIRE, E. MEDERNACH, K. MINAMIMOTO, P. MORA DE FREITAS, Y. MORITA, K. MURAKAMI, M. NAGAMATU, R. NARTALLO, P. NIEMINEN et al : Geant4 – a simulation toolkit. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A : Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*, 506(3):250 – 303, 2003. ISSN 0168-9002. URL <http://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0168900203013688>.
- O. C. ALLKOFFER, K. CARTENSEN et W. D. DAU : The absolute cosmic ray muon spectrum at sea level. *Physics Letter*, 36B(4):425–427, 1971.
- O. C. ALLKOFFER et T.K. GREIDER : Cosmic rays on earth. 1984.
- H. M. ARAUJO, V. A. KUDRYAVTSEV, N. J. C. SPOONER et T. J. SUMNER : Muon-induced neutron production and detection with GEANT4 and FLUKA. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A*, 545:398–411, 2005.
- A. AXELSSON, L. MARTENSSON, A. MORTSELL et A. RINGBOM : Improvement of the SAUNA noble gas system calibration procedures. Foi report, FOI, 2012.



- G. BATTISTONI, F. CERUTTI, A. FASSO, A. FERRARI, S. MURARO et et AL. : The FLUKA code : description and benchmarking. *AIP Conference Proceedings*, 896:31, 2007.
- M. M. BÉ, V. CHISTÉ et C. DULIEU : *Nucléide-LARA Bibliothèque des émissions Alpha, X et Gamma*. Monographie BIPM, 2008. ISBN 0429-3460.
- L. BLÄCKBERG, E. METSANURK, A. TAMM, A. AABLOO et M. KLINTENBERG : Molecular dynamics study of xenon on an amorphous  $\text{Al}_2\text{O}_3$  surface. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A*, 2014.
- P. BOSSEW : A very long-term HPGe-background gamma spectrum. *Applied Radiation and Isotopes*, 62:635–644, 2005.
- R. BRITTON, J. L. BURNETT, A. V. DAVIES et P. H. REGAN : Maximising the sensivity of a gamma spectrometer for low-energy, low-activity radionuclides using Monte Carlo simulations. *Journal of Environmental Radioactivity*, 134:1–5, 2014.
- J. L. BURNETT et A. V. DAVIES : Investigating the time resolution of a compact multidimensionnal gamma-spectrometer. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, 288:699–703, 2011.
- J. L. BURNETT et A. V. DAVIES : Development of a cosmic veto gamma-spectrometer. *Journal of Radioanalytical Nuclear Chemistry*, 292:1007–1010, 2012.
- J. L. BURNETT et A. V. DAVIES : Cosmic veto gamma-spectrometry for Comprehensive Nuclear-Test-Ban Treaty samples. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A*, 747:37–40, 2014.
- A. CAGNIANT, G. DOUYSET, J.-P. FONTAINE, P. GROSS et G. LE PETIT : An introduction to GAMMA<sup>3</sup> a new versatile ultralow background gamma spectrometer. Background description and analysis. *Applied Radiation and Isotopes*, 98:125–133, 2015.
- A. CAGNIANT, G. LE PETIT, P. GROSS, G. DOUYSET, H. RICHARD-BRESSAND et J.-P. FONTAINE : Improvements of low-level radioxenon detection sensitivity by state-of-the art coincidence setup. *Applied Radiation and Isotopes*, 87:48–52, 2013.
- A. CAGNIANT, G. LE PETIT, B. NADALUT, P. GROSS, H. RICHARD-BRESSAND, J.-P. FONTAINE et G. DOUYSET : On the use of  $^{127}\text{Xe}$  standards for the calibration of CTBTO nobel gas stations and support laboratories. *Applied Radiation and Isotopes*, 89:176–185, 2014.
- S. CHARALAMBUS : Nuclear transmutation by negative stopped muons and the activity induced by the cosmic-ray muons. *Nuclear Physics A*, 166:145–161, 1971.
- V. CHAZAL, F. BOEHM, B. COOK, H. HENRIKSON, G. JONKMANS, A. PAIC, N. MASCARENHAS, P. VOGEL et J.-L. VUILLEUMIER : Investigations of fast neutron production by 190 GeV/c muon interactions on different targets. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A*, 490:334–343, 2002.

- V. CHISTÉ, M. M. BÉ et M. GALAN : Radionuclide database, March 2014. URL [www.nucleide.org/DDEP.html](http://www.nucleide.org/DDEP.html).
- W. N. COTTINGHAMHE et D. A. GREENWOOD : *An Introduction to the Standard Model of Particle Physics*, volume 1. Cambridge University Press, 2 édition, 2010.
- CTBTO : *The Comprehensive Nuclear Test Ban Treaty*. C.T.B.T.O., Vienna, Austria, 1996.
- L. A. CURRIE : Nomenclature in evaluation of analytical methods including detection and quantification capabilities. *Pure and Applied Chemistry*, 67(10):1699–1723, 1995.
- L.-E. DE GEER : CTBT relevant radionuclides. *Technical Report PTS/IDC-1999/02*, April 1999.
- L.-E. DE GEER : Comprehensive Nuclear-Test-Ban Treaty : relevant radionuclides. *Kern-technik*, 66(3):113–120, 2001.
- A. de VISMES OTT, S. AUBRY, D. MEKHLOUCHE, X. CAGNAT et R. GURRIARAN : Simple cost-effective anti-cosmic device. 17-21 Sept. 2012 2012.
- A. T. FARSONI, B. ALEMAYEHU et A. ALHAWSAWI : Preliminary measurements with a Compton-suppressed Phoswich detector. *2011 Monitoring Research Review : Ground-Based Nuclear Explosion Monitoring Technologies*, 2011.
- A. T. FARSONI, E. M. BECKER, B. ALEMAYEHU et A. ALHAWSAWI : A compton-suppressed phoswich detector for gamma specctroscopy. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, 2012.
- L. FERREUX, G. MOUTARD et T. BRANGER : Measurement of natural radionuclides in phosphgypsum using an anti-cosmic gamma-ray spectrometer. *Applied Radiation and Isotopes*, 67:957–960, 2009.
- J.-P. FONTAINE, F. POINTURIER, X. BLANCHARD et T. TAFFARY : Atmospheric xenon radioactive isotope monitoring. *Journal of Environmental Radioactivity*, 72:129, 2004.
- G. GILMORE : *Practical Gamma-ray Spectrometry*, volume 1. John Wiley & Sons, second edition édition, 2008.
- D. K. HAINES, T. M. SEMKOW, A. J. KHAN, M. HOFFMAN, S. T. MEYER et S. E. BEACH : Muon and neutron-induced background in gamma-ray spectrometry. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A*, 652:326–329, 2011.
- D. R. HAMILTON : On directional correlation of successive quanta. *Physical Review*, 58:122–131, 1940.
- W. HENNING, C. E. COX, S. J. ASZTALOS, H. TAN, P. FRANZ, P. GRUDBERG, W. WARBURTON et A. HUBER : Study of silicon detectors for high resolution radioxenon measurements. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, 2012a.

- W. HENNING, C. E. COX, S. J. ASZTALOS, H. TAN, P. FRANZ, A. XIANG, P. GRUDBERG, W. WARBURTON, A. HUBER, S. BIEGALSKI, A. BRAND et D. HAAS : Radioxenon measurements with a coincidence silicon detector system. *2012 Monitoring Research Review : Ground-Based Nuclear Explosion Monitoring Technologies*, 2012b.
- W. HENNING, W. K. WARBUTON, A. FALLU-LABRUYERE, K. SABOUROV, M. W. COOPER, J. I. MCINTYRE, A. GLEYZER, M. BEAN, E. P. KORPACH, K. UNGAR, W. ZHANG et P. MEKARSKI : Develoment of a Phoswich detector system for radioxenon monitoring. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, 282:681–685, 2009.
- G. HEUSSER : Cosmic ray-induced background in Ge-spectrometry. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B*, 83:223–228, 1993.
- G. HEUSSER : Low-radioactivity background techniques. *Annual Reviews Nuclear Particle Sciences*, 45:543–590, 1995.
- G. HEUSSER, M. WEBER, T. DENZ, J. HAKENMUELLER, R. HOFACKER, R. LACKNER, W. LINDNER, M. Maneschg, M. REISFELDER, H. SIMGEN, J. SCHREINER, D. STOLZENBURG, H. STRECKER et J. WESTERMANN : GIOVE, a shallow laboratory Ge-spectrometer with 100  $\mu\text{Bq/kg}$  sensitivity. *AIP Conference Proceedings*, 1549(12), 2013.
- M. HOFMANN, T. MANNEL et M. V. SIVERS : Low-background gamma-ray spectrometry in the Garching underground laboratory. In *Low Radioactivity Techniques 2013*, Assergi, Italy, 2013.
- S. HORNE : *Multispectral Gamma-Ray Analysis Using Clover Detectors with Application to Uranium Fission Product Analysis*. Thèse de doctorat, The University of Texas at Austin, 2013.
- S. HORNE, K. R. JACKMAN et S. LANDSBERGER : Comparison of background gamma-ray spectra between Los Alamos, New Mexico and Austin, Texas. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, 296:349–355, 2013.
- S. HORNE, S. LANDSBERGER et B. DICKSON : Determination of isotopic ratios of uranium samples using passive gamma spectroscopy with multiple detectors. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, 299:1171–1175, 2014.
- J. H. HUBBELL et S.M. SELTZER : Table of X-Ray mass attenuation coefficients and mass energy-absorption coefficients from 1 keV to 20 MeV for elements  $Z = 1$  to 92 and 48 additional substances of dosimetric interest. *NIST Standard Reference Database 126*, 2004.
- M. HULT, M. J. MARTINEZ CANET, M. KÖHLER, J. das NEVES et P. N. JOHNSTON : Recent developments in ultra low-level gamma-ray spectrometry at IRMM. *Applied Radiation and Isotopes*, 53:225–229, 2000.

- S. HURTADO, M. GARCIA-LEON et R. GARCIA-TENORIO : Optimized background reduction in low-level gamma-ray spectrometry at a surface laboratory. *Applied Radiation and Isotopes*, 64:1006–1012, 2006.
- S. IHANTOLA : *Novel Approches to the analysis of nuclear and other radioactive materials*. Doctoral dissertation, Aalto University, 2013.
- S. INCERTI, G. BALDACCHINO, M. BERNAL, R. CARPA, C. CHAMPION, Z. FRANCIS, P. GUÈYE, A. MANTERO, B. MASCIALINO, P. MORETTO, P. NIEMINEN, C. VILLAGRASA et C. ZACHARATOU : The GEANT4-DNA project. *International Journal of Modeling, Simulation and Scientific Computing*, 01(02), 2010.
- V. T. JORDANOV, G. F. KNOLL, C. H. UBER et J. A. PANTAZIS : Digital techniques for real-time pulse shaping in radiation measurements. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A*, 353:261–264, 1994.
- M. JURADO VARGAS, B. CARO MARROYO et Martin SANCHEZ : Measurements of  $\alpha$ - $\gamma$  coincidences with an optimized dual-parameter multichannel system. *Applied Radiation and Isotopes*, 82:308–313, 2013.
- C. JUTIER et G. DOUYSET : Performance assessment by Monte Carlo simulations of a prospective assembly of up to three HPGe detectors designed for superior detection efficiency and sensitivity. *Applied Radiation and Isotopes*, 70:1969–1973, 2012.
- M. B. KALINOWSKI, A. AXELSSON, M. BEAN, X. BLANCHARD, T. W. BOWYER, G. BRACHET, S. HEBEL, J. I. MCINTYRE, J. PETERS, C. PISTNER, M. RAITH, A. RINGBOM, P. R. J. SAEY, T. J. SCHLOSSER, C. Stocki, T. TAFFARY et K. UNGAR : Discrimination of nuclear explosions against civilian sources based on atmospheric xenon isotopic activity ratios. *Pure and Applied Geophysics*, 167:517–539, 2010.
- M. KEILLOR, C. AALSETH, A. R. DAY, L. ERIKSON, B. D. GLASGOW, E. W. HOPPE, T. HOSSBACH, L. MIZOUNI, A. W. MYERS, C. T. OVERMAN, A. SEIFERT et T. STAVENGER : A new gamma-gamma coincidence analysis system. *2011 Monitoring Research Review : Ground-Based Nuclear Explosion Monitoring Technologies*, 2011.
- A. J. KHAN, T. M. SEMKOW, S. E. BEACH, D. K. HAINES, C. J. BRADT, A. BARI, U.-F. SYESD, M. TORRES, J. MARRANTINO, M. E. KITTO, T. MENIA et E. FIELMAN : Application of low-background gamma-ray spectrometry to monitor radioactivity in the environment and food. *Applied Radiation and Isotopes*, 2014.
- G. F. KNOLL : *Radiation Detection and Measurement*. John Wiley & Sons, Inc. 4 édition, 2010.
- M. KOEHLER, D. DEGERING, M. LAUBENSTEIN, P. QUIRIN, M.-O. LAMPERT, M. HULT, D. ARNOLD, S. NEUMAIER et J. L. REYSS : A new low-level gamma-ray spectrometry system for environmental radioactivity at the underground laboratory felsenkeller. *Applied Radiation and Isotopes*, 67:736–740, 2009.

- J. KONKI, P. T. GREENLEES, U. JAKOBSSON, P. JONES, R. JULIN, S. JUUTINEN, S. KETELHUT, K. HAUSCHILD, A.-P. KONTRO, R. Leppänen, A. LOPEZ-MARTENS, A. MATTILA, P. NIEMINEN, M. NYMAN, K. PERÄJÄRVI, P. PEURA, P. RAHKILA, P. RUOTSALAINEN, J. SAREN, C. SCHOLEY, J. SORRI, H. TOIVONEN, J. TURUNEN et J. UUSITALO : Comparison of gamma-ray coincidence and low-background gamma-ray singles spectrometry. *Applied Radiation and Isotopes*, 70:392–396, 2012.
- V. A. KUDRYAVTSEV, L. PANDOLA et V. TOMASELLO : Neutron- and muon-induced background in underground physics experiments. *The European Physical Journal A*, 36(2):171–180, 2008.
- V. A. KUDRYAVTSEV, N. J. C. SPOONER et J. E. MCMILLAN : Simulations of muon-induced neutron flux at large depths underground. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A*, 505:688–698, 2003.
- G. LE PETIT, A. CAGNIANT, M. MORELLE, P. GROSS, P. ACHIM, G. DOUYSET, T. TAFARY et C. MOULIN : Innovative concept for a major breakthrough in atmospheric radioactive xenon detection for nuclear explosion monitoring. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, 298:1159–1169, 2013.
- A. LINDOTE, H. M. ARAÚJO, V. A. KUDRYAVTSEV et M. ROBINSON : Simulation of neutrons produced by high-energy muons underground. *Astroparticle Physics*, 31:366–375, 2009.
- W. LOHMANN, R. KOPP et R. USS : Energy loss of muons in the energy range 1-10 000 GeV. *Yellow Report, CERN 85-03 Experimental Physics Division*, 1985.
- K. M. MATTHEWS : The CTBT verification significance of particulate radionuclides detected by the internal monitoring system. NRL report, National Radiation Laboratory, Ministry of Health, PO Box 25099, Christchurch, New Zealand, 2005.
- A. L. MCNAMARA, H. HEIJNIS, D. FIERRO et M. I. REINHARD : The determination of the efficiency of a Compton suppressed HPGe detector using Monte Carlo simulations. *Journal of Environmental Radioactivity*, 106:1–7, 2012.
- N. MENAA, B. D’AGOSTINO, P. Zakrzewski et V. T. JORDANOV : Evaluation of real-time digital pulse shapers with various HPGe and silicon radiation detectors. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A*, 652:512–515, 2011.
- M. MOTOKI, T. SANUKI, S. ORITO, K. ABE, K. ANRAKU, Y. ASAOKA, M. FUJIKAWA, H. FUKE et al. ET : Precise measurements of atmospheric muon fluxes with the BESS spectrometer. *Astroparticle Physics*, 19:113–126, 2003.
- G. MURRAY, N. E. SANDERSON et J. C. WILLMOTT : Low-lying positive-parity states in  $^{71}\text{Ge}$ . *Nuclear Physics A*, 171:435–448, 1971.
- D. B. PELOWITZ, J. W. DURKEE, J. S. ELSON, M. L. FENSIN, J. S. HENDRICKS, M. R. JAMES, R. C. JOHNS, G. W. MCKINNEY, S. G. MASHNIK, J. M. VERBEKE, L. S. WATERS et T. A. WILCOX : Mcnpx 2.7.0 extensions. *LA-UR-11-02295*, 2011.

- F. PERROT, Ph. HUBERT, Ch. MARQUET, M. S. PRAVIKOFF, P. BOURQUIN, H. CHIRON, P.-Y. GUERNION et A. NACHAB : Evidence of  $^{131}\text{I}$  and  $^{134,37}\text{Cs}$  activities in Bordeaux, France due to the Fukushima nuclear accident. *Journal of Environmental Radioactivity*, 114:61–65, 2012.
- F. POINTURIER, J. LAUREC, X. BLANCHARD et A. ADAM : Cosmic-ray induced background reduction by means of an anticoincidence shield. *Applied Radiation and Isotopes*, 47:1043–1048, 1996.
- P. P. POVINEC, M. BETTI, A. J. T. JULL et P. VOJTYLA : New isotope technologies in environmental physics. *acta physica slovacica*, 58(1):1–154, 2008a.
- P. P. POVINEC, J.-F. COMANDUCCI et I. LEVY-PALOMO : IAEA - MEL's underground counting laboratory in monaco—background characteristics of HPGe detectors with anti-cosmic shielding. *Applied Radiation and Isotopes*, 61:85–93, 2004.
- P. P. POVINEC, P. VOJTYLA et J.-F. COMANDUCCI : Monte-Carlo simulation of background characteristics of gamma-ray spectrometers – A comparison with experiments. *Radioactivity in the Environment*, 11:163–208, 2008b.
- V. V. PRELOVSKII, N. M. KAZARINOV, A. Yu. DONETS, V. Yu. POPOV, I. YU. POPOV et N. V. SKIRDA : The ARIX-03F mobile semiautomatic facility for measuring low concentrations of radioactive xenon isotopes in air and subsoil gas. *Instruments and Experimental Techniques*, 50(3):393–397, 2007.
- A. RINGBOM, A. AXELSSON, M. ALDENER, M. AUER, T. W. BOWYER, T. FRITIOFF, I. HOFFMAN, K. KHRUSTALEV, M. NIKKINEN, V. POPOV, Y. POPOV, K. UNGAR et G. WOTAWA : Radioxenon detection in the CTBT international monitoring system likely related to the announced nuclear test in North Korea on February 12, 2013. *Journal of Environmental Radioactivity*, 128:47–63, February 2014.
- A. RINGBOM, T. LARSON, A. AXELSSON, K. ELMGREN et C. JOHANSSON : SAUNA –a system for automatic sampling, processing, and analysis of radioactive xenon. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research*, A(508):542–553, 2003.
- P. R. J. SAEY : The influence of radiopharmaceutical isotope production on the global radioxenon background. *Journal of Environmental Radioactivity*, 100:296–406, 2009.
- P. R. J. SAEY, C. SCHLOSSER, P. ACHIM, M. AUER, A. AXELSSON, A. BECKER, X. BLANCHARD, G. BRACHET, L. CELLA, L.-E. DE GEER, M. B. KALINOWSKI, G. LE PETIT, J. PETERSON, V. POPOV, Y. POPOV, A. RINGBOM, H. SARTORIUS, T. TAFFARY et M. ZHRINGER : Environmental radioxenon levels in europe : a comprehensive overview. *Pure and Applied Geophysics*, 167:499–515, 2010.
- F. SALVAT, J. M. FERNANDEZ-VAREA, E. ACOSTA et J. SEMPAY : PENELOPE, a code system for monte carlo simulation of electron and photon transport. *Proceedings of a Workshop/Training Course, OECD/NEA*, 2001.

- T. SCHROETTNER, I. SCHRAICK, T. FURCH et P. KINDL : A high-resolution, multi-parameter, beta-gamma coincidence, mu-gamma anticoincidence system for radioxenon measurement. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A*, 621:478–488, 2010.
- T. SCHROETTNER, M. SCHWAIGER et P. KINDL : Optimization of an active anti cosmic veto shielding. *Applied Radiation and Isotopes*, 61:133–138, 2004.
- M. SCHWAIGER, F. STEGER, T. SCHROETTNER et C. SCHMITZER : A ultra low level laboratory for nuclear test ban measurements. *Applied Radiation and Isotopes*, 56:375–378, 2002.
- T. SIISKONEN et H. TOIVONEN : A model for fitting peaks induced by fast neutrons in an HPGe detector. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A*, 540:403–411, 2005.
- O. SIMA et D. ARNOLD : On the monte carlo simulation of HPGe gamma-spectrometry systems. *Applied Radiation and Isotopes*, 67:701–705, 2009.
- J. G. SKELLAM : The frequency distribution of the difference between two poisson variates belonging to different populations. *Journal of the Royal Statistical Society*, 109(3):296, 1946.
- K. J. THOMAS, E. B. NORMAN, A. R. SMITH et Y. D. CHAN : Installation of a muon veto for low background gamma spectroscopy at the LBNL low-background facility. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research*, A(724):47–53, 2013.
- B. E. TOMLIN, R. ZEISLER et R. M. LINDSTROM : gamma-gamma coincidence spectrometer for instrumental neutron-activation analysis. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A*, 243-249:243–249, 2008.
- S. TSUJI, T. KATAYAMA, K. OKEI, T. WADA, I. YAMAMOTO et Y. YAMASHITA : Measurements of muons at sea level. *Journal of Physics G : Nuclear and Particle Physics*, 24:1805–1822, 1998.
- J. TURUNEN, S. IHANTOLA, K. PERÄJÄRVI, R. PÖLLÄNEN, H. TOIVONEN et E. HRNECEK : Collection and behavior of radon progenies on thin Mylar foils. *Radiation Measurement*, 46(6):631–634, 2011.
- P. van BEEK, M. SOUHOUT, B. LANSARD, M. BOURQUIN, J. L. REYSS, P. von BALLMOOS et P. JEAN : LAFARA : a new underground laboratory in the French Pyrénées for ultra low-level gamma-ray spectrometry. *Journal of Environmental Radioactivity*, (116):152–158, 2013.
- K. VETTER : Recent developments in the fabrication and operation of germanium detectors. *Annual Reviews Nuclear Particle Sciences*, 57:363–404, 2007.

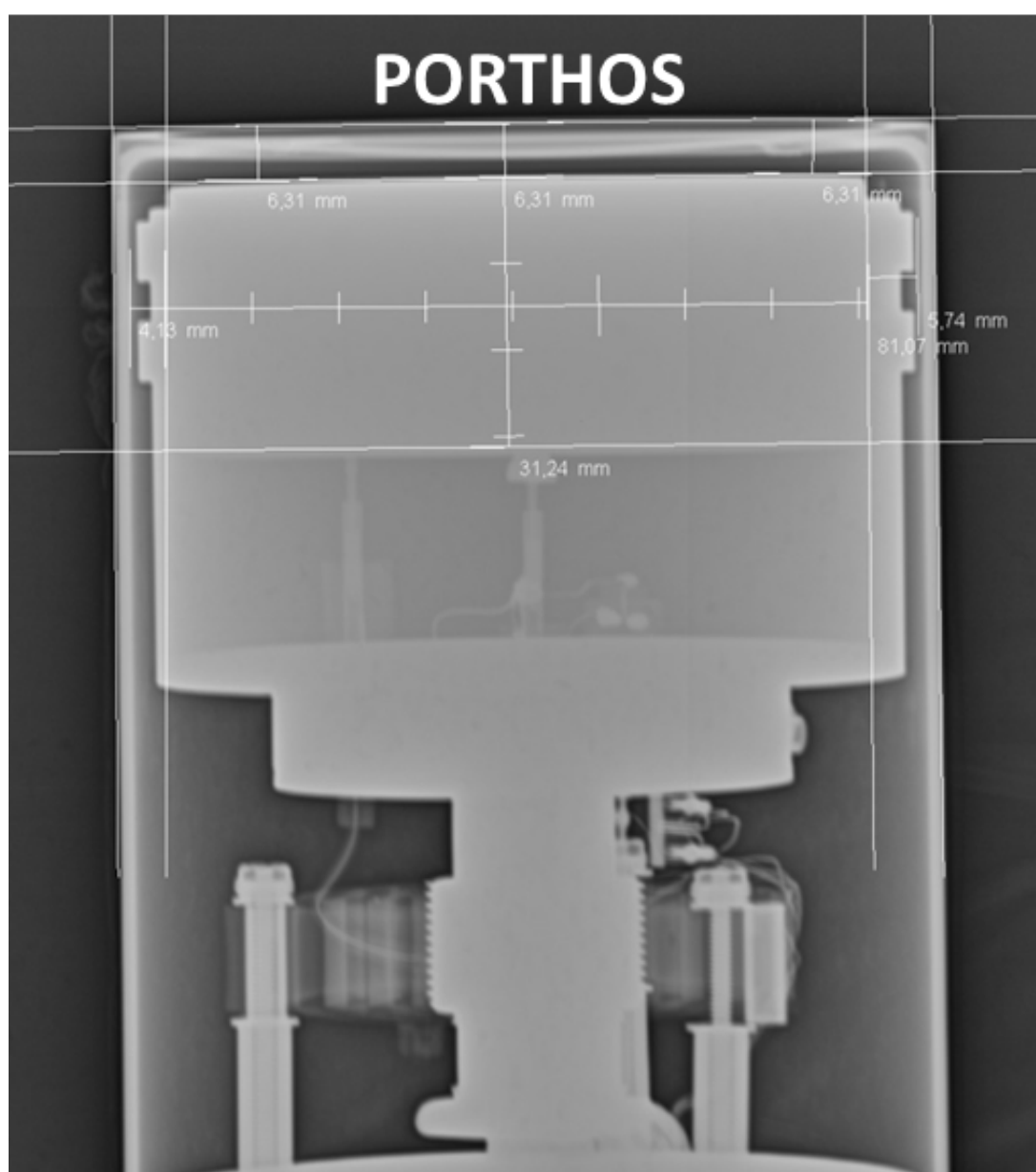
- T. VIDMAR, I. AUBINEAU-LANIECE, M. J. ANAGNOSTAKIS, D. ARNOLD, R. BRETTNER-MESSLER, D. BUDJAS, M. CAPOGNI, M. S. DIAS, L.-E. DE GEER, A. FAZIO, J. GASPARRO, M. HULT, S. HURTADO, M. JURADO VARGAS, M. LAUBENSTEIN, K. B. LEE, Y.-K. LEE, M.-C. LÉPY, F.-J. MARINGER, V. MEDINA PEYRES, M. MILLE, M. MORALLES, S. NOUR, PLENTEDA, M. P. RUBIO MONTERO, O. SIMA, C. TOMEI et G. VIDMAR : An intercomparison of Monte Carlo codes used in gamma-ray spectrometry. *Applied Radiation and Isotopes*, 66:764–768, 2008.
- A. VIVIER et J. AUPIAIS : Optimization of the decision threshold for single radioactive counting. *Radiochimistry Acta*, 95:477–492, 2007.
- P. VOJTYLA : A computer simulation of the cosmic-muon background induction in a Ge  $\gamma$ -spectrometer using GEANT. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B*, 100:87–96, 1995.
- P. VOJTYLA : Fast computer simulations of background of low-level Ge  $\gamma$ -spectrometers induced by  $^{210}\text{Pb}/^{210}\text{Bi}$  in shielding lead. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B*, 117:189–198, 1996a.
- P. VOJTYLA : Influence of shield parameters on cosmic-muon induced backgrounds of Ge  $\gamma$ -spectrometers. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B*, 111:163–170, 1996b.
- P. VOJTYLA, J. BEER et P. STAVINA : Experimental and simulated cosmic muon induced background of a Ge spectrometer equipped with a top side anticoincidence proportional chamber. *Nuclear instruments and Methods in Physics Research B*, 86:380–386, 1994.
- P. VOJTYLA et P. P. POVINEC : A Monte Carlo simulation of background characteristics of low-level HPGe detectors. *Applied Radiation and Isotopes*, 53:185–190, 2000.
- Y.-F. WANG, V. BALIC, G. GRATTA, A. FASSO, S. ROESLER et A. FERRARI : Predicting neutron production from cosmic-ray muons. *Physical Review D*, 64, 2001.
- G. A. WARREN et R. C. RUNKLE : New concepts for radiometric measurements of environmental samples. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, 1(1), 2012.
- J. S. E. WIESLANDER, M. HULT, J. GASPARRO, G. MARISSENS, M. MISIASZEK et W. PREUSSE : The Sandwich spectrometer for ultra-low gamma-ray spectrometry. *Applied Radiation and Isotopes*, 67:731–735, 2009.
- Sanoo WIKIPEDIA : Worldwide nuclear testing, January 2006. URL [https://commons.wikimedia.org/wiki/File:Worldwide\\_nuclear\\_testing\\_fr.png](https://commons.wikimedia.org/wiki/File:Worldwide_nuclear_testing_fr.png).
- W. ZHANG, K. UNGAR, M. STUKEL et P. MEKARSKI : A gamma-gamma coincidence/anticoincidence spectrometer for low-level cosmogenic  $^{22}\text{Na}/^7\text{Be}$  measurement. *Journal of Environmental Radioactivity*, 130:1–6, 2014.



- W. ZHANG, J. YI, P. MEKARSKI, K. UNGAR, B. HAUCK et G. H. KRAMER : A gamma-gamma coincidence spectrometric method for rapid characterization of uranium isotopic fingerprints. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, (288):43–47, 2011a.
- W. ZHANG, J. YI, P. MEKARSKI, K. UNGAR, B. HAUCK et G. H. KRAMER : Quantification of  $^{235}\text{U}$  and  $^{238}\text{U}$  activity concentration for undeclared nuclear materials by a digital gamma-gamma coincidence spectroscopy. *Applied Radiation and Isotopes*, 69:904–907, 2011b.

## Annexe A

### Radiographie du détecteur Porthos

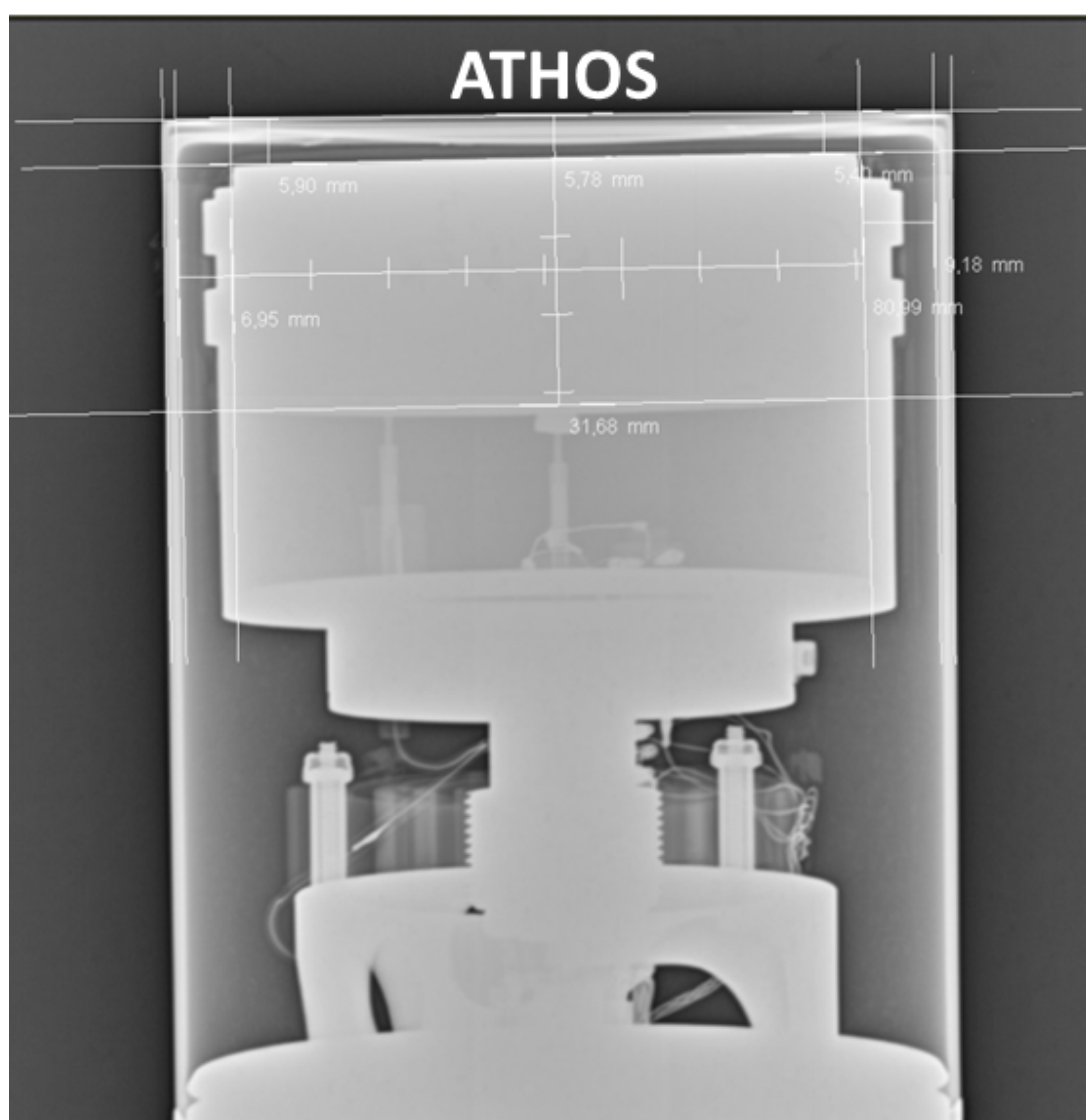


**Figure A.1** – Radiographie du détecteur PORTHOS.



## Annexe B

### Radiographie du détecteur Athos

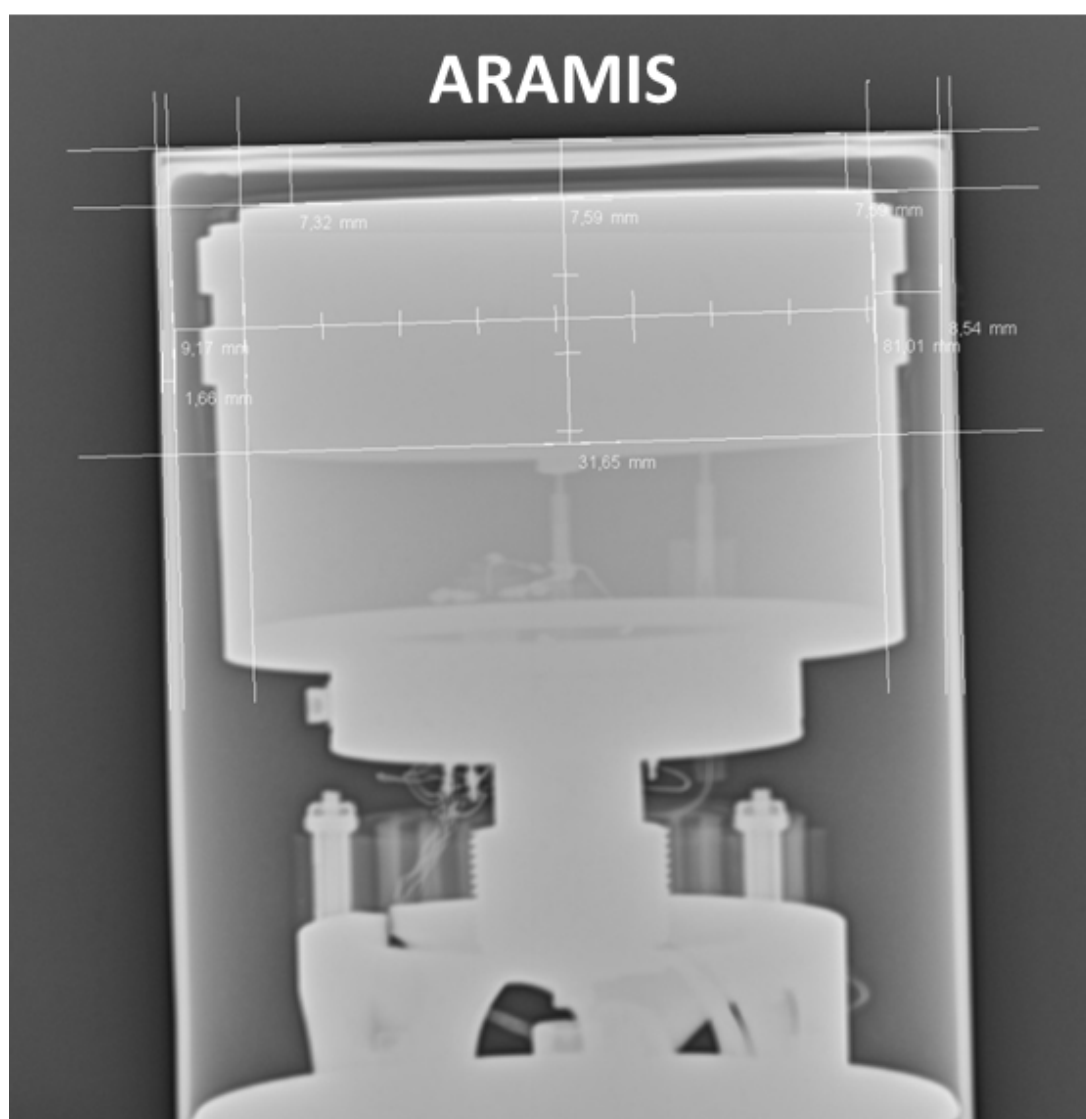


**Figure B.1** – Radiographie du détecteur ATHOS.



## Annexe C

### Radiographie du détecteur Aramis



**Figure C.1** – Radiographie du détecteur ARAMIS.



# Annexe D

## Publications



# Innovative concept for a major breakthrough in atmospheric radioactive xenon detection for nuclear explosion monitoring

G. Le Petit · A. Cagniant · M. Morelle ·  
P. Gross · P. Achim · G. Douysset · T. Taffary ·  
C. Moulin

Received: 1 February 2013 / Published online: 17 May 2013  
© The Author(s) 2013. This article is published with open access at Springerlink.com

**Abstract** The verification regime of the comprehensive test ban treaty (CTBT) is based on a network of three different waveform technologies together with global monitoring of aerosols and noble gas in order to detect, locate and identify a nuclear weapon explosion down to 1 kt TNT equivalent. In case of a low intensity underground or underwater nuclear explosion, it appears that only radioactive gases, especially the noble gas which are difficult to contain, will allow identification of weak yield nuclear tests. Four radioactive xenon isotopes,  $^{131\text{m}}\text{Xe}$ ,  $^{133\text{m}}\text{Xe}$ ,  $^{133}\text{Xe}$  and  $^{135}\text{Xe}$ , are sufficiently produced in fission reactions and exhibit suitable half-lives and radiation emissions to be detected in atmosphere at low level far away from the release site. Four different monitoring CTBT systems, ARIX, ARSA, SAUNA, and SPALAX<sup>TM</sup> have been developed in order to sample and to measure them with high sensitivity. The latest developed by the French Atomic Energy Commission (CEA) is likely to be drastically improved in detection sensitivity (especially for the metastable isotopes) through a higher sampling rate, when equipped with a new conversion electron (CE)/X-ray coincidence spectrometer. This new spectrometer is based on two combined detectors, both exhibiting very low radioactive background: a well-type NaI(Tl) detector for photon detection surrounding a gas cell equipped with two large passivated implanted planar silicon chips for electron detection. It is characterized by a low electron energy

threshold and a much better energy resolution for the CE than those usually measured with the existing CTBT equipments. Furthermore, the compact geometry of the spectrometer provides high efficiency for X-ray and for CE associated to the decay modes of the four relevant radionuclides. The paper focus on the design of this new spectrometer and presents spectroscopic performances of a prototype based on recent results achieved from both radioactive xenon standards and air sample measurements. Major improvements in detection sensitivity have been reached and quantified, especially for metastable radioactive isotopes  $^{131\text{m}}\text{Xe}$  and  $^{133\text{m}}\text{Xe}$  with a gain in minimum detectable activity (about  $2 \times 10^{-3}$  Bq) relative to current CTBT SPALAX<sup>TM</sup> system (air sampling frequency normalized to 8 h) of about 70 and 30 respectively.

**Keywords** Radioactive xenon · Beta/conversion electron-X-ray/photon coincidence · SPALAX<sup>TM</sup> · Silicon detector · CTBT

## Introduction

Since the opening for signature of the Comprehensive Test Ban Treaty (CTBT) in New York on September 24th 1996 with the goal to ban nuclear test explosions in any environment, the verification regime in place over years through the International Monitoring System (IMS) is today nearly reaching its nominal effectiveness relying on three different wave form technologies (seismic, infrasound and hydro-acoustic) and two radionuclide technologies (atmospheric aerosols and noble gas). In case of low yield underwater or underground nuclear explosion, it is admitted that only radioactive gases, especially noble gas difficult to contain (nearly inert gas), can be released to the

G. Le Petit (✉) · A. Cagniant · P. Gross · P. Achim ·  
G. Douysset · T. Taffary · C. Moulin  
CEA, DAM, DIF, 91297 Arpajon, France  
e-mail: gilbert.le-petit@cea.fr

M. Morelle  
Canberra Semiconductor NV, Olen, Belgium

atmosphere through dynamic venting or atmospheric pumping [1–4]. Among them four radioactive isotopes of xenon,  $^{131\text{m}}\text{Xe}$ ,  $^{133\text{m}}\text{Xe}$ ,  $^{133}\text{Xe}$  and  $^{135}\text{Xe}$  produced in fission processes and exhibiting suitable half-lives and radiation emissions can be detected in atmosphere far away from the site release. Their detections provide an undisputable evidence of a nuclear test relative to the wave form technologies that could bring only presumption of an illicit test in case of low nuclear yield. This was typically the case regarding the nuclear test conducted by Democratic People's Republic of Korea (DPRK) in 2006 reported by a Swedish noble gas system similar to an IMS one [5]. On May 25th 2009, DPRK announced that it had conducted a second nuclear test and waveform signals recorded for this event at seismic stations around the globe exhibit characteristic of a nuclear explosion [6], however no radioactive xenon emissions correlated to the event was measured by the IMS network. This case implies, if the 2009 DPRK test is a nuclear one, that the explosion gases were quite well contained in the cavity of the nuclear experiment or either the xenon emission releases were too weak to be detected by the noble gas station network, in spite of their high sensitivity, or not distinguishable from the global radioactive xenon background originating from nuclear power plant operations and from medical isotope production plants [7–12]. Identify a specific radioactive xenon isotope signal present in air, far away from the expected release site, as the one emanating from a nuclear weapon explosion is not trivial even using isotopic ratio analysis, which can be very complex to exploit, since many source and scenario factors play a key role in the associated signature as presented in several studies [13, 14].

Better sensitivity is therefore still needed for radioxenon monitoring systems in order to enhance the detection of a prohibited nuclear experiment. Furthermore, such improvement will allow for higher sampling frequency limiting the impact of atmospheric dilution (as well as influence of civilian source terms) and therefore, together with atmospheric transport modelling, improving the test site localisation. Several ways to reach this goal have been summarized in a recent work [15], such as larger air volume sampled using new dry compressors with a better xenon extraction and improvements in purification/concentration processes with the use of new membranes/adsorbents or new technologies, improvement in detection efficiencies and time measurement by coupling several detectors, drastic reduction of the detector overall background and above all by considering a complete refinement of the radioxenon monitoring sub-system detection. This paper focus on a new efficient based-silicon detector concept for beta and conversion electron (CE) emission measurement coupled to a well-type NaI(Tl) for X-ray and gamma radioxenon emission measurement, both detector

exhibiting a very low radioactive background. This detector combination leads to a new compact spectrometer allowing CE/ $\beta$ -X/ $\gamma$  coincidence detection with high efficiencies and a powerful isotope discrimination due to a high electron energy resolution.

### Importance of the radioxenon system's sample time frequency

The four systems developed for the CTBT verification regime, i.e. the Swedish Automatic Unit for Noble gas Acquisition [16], the automated radioxenon sampler and analyser (ARSA, Bowyer et al. [17] 1996), the Analyser of Xenon Radioisotopes (ARIX, Y. [18]), the Système de Prélèvement Automatique en Ligne avec l'Analyse du Xénon atmosphérique (SPALAX<sup>TM</sup>, [19]), perform radioxenon measurement either using high-resolution HPGe gamma spectroscopy (SPALAX) or  $\beta$ - $\gamma$  coincidence spectroscopy from a plastic scintillator coupled with a NaI(Tl) detector (ARSA, ARIX and SAUNA). Whatever the system, minimum detectable concentrations (MDCs) for isotopes  $^{133}\text{Xe}$  and  $^{135}\text{Xe}$  are quite similar (respectively  $\approx 0.1$  and  $0.5 \text{ mBq.m}^{-3}$ ) but lower for the metastable isotopes with the  $\beta$ - $\gamma$  systems due to better emission probability of the decay modes considered in this technique. However, owing to their poor energy resolutions, especially for the electron signals ( $\approx 30$ – $35\%$ ) [20], these systems aren't taking advantage of their better sensitivity for the isotopes  $^{131\text{m}}\text{Xe}$  and  $^{133\text{m}}\text{Xe}$  since many interferences (or memory effect) in the coincidence region of interest (ROI) have to be solved, involving sophisticated algorithms [21, 22]. In the other hand, the SPALAX<sup>TM</sup> system exhibits a longer air sampling frequency (24 h compared to 12 h for the other systems) which can be a drawback for the closest noble gas stations owing to the effect of the atmospheric dilution of any original signal during the transport of the contaminated air masses.

In order to improve sensitivity of the SPALAX<sup>TM</sup> IMS noble gas station in atmospheric radioactive xenon detection from a new spectrometer design and consequently to allow better event discrimination [23], one should define and focus on some key parameters. One of them which will directly impact the detector features is related to the sampling frequency. One aims to reach is weighting up the pros and con between the potential gain in detection and the associated complexity of the station operational cycle. Figure 1 illustrates the influence of the average sampling time on the calculated activity concentration levels from a hypothetical release case. In this example, a simulated release from the DPRK test site (open triangle) involving a  $10^{13} \text{ Bq}$  source term is continuously emitted during 1 h. The dispersion of the plume is then calculated from real

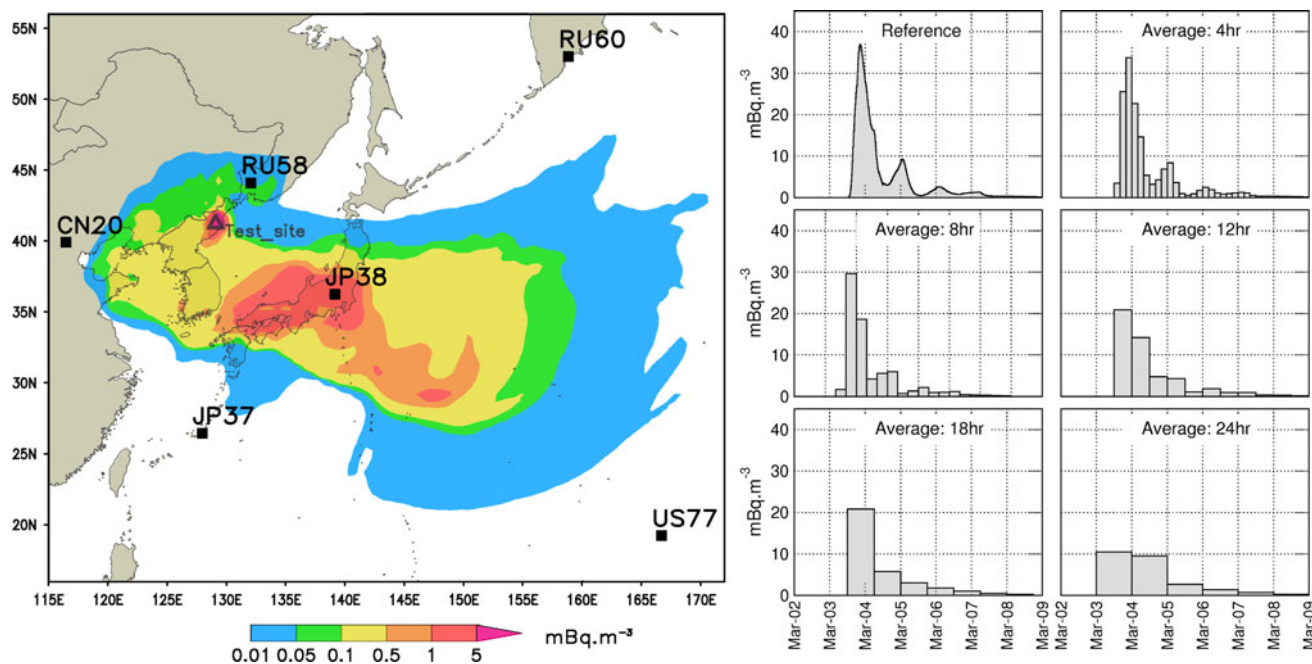
meteorological wind field over 8 days from the initial event occurrence (T0, initiated on March 1, 2012). The left part of the Fig. 1 shows the average activity concentrations, expressed in  $\text{mBq}\cdot\text{m}^{-3}$ , in the time range T0–T0 + 8 days, while the right part exhibits the activity concentrations calculated over time at the JPX38 IMS site (Takasaki, Japan) by varying the virtual noble gas station sampling time. This example clearly shows that a sampling time less than 12 h leads to a stronger detected signal, close to a factor up to 3 compared to a 24 h sampling period systems. Although the case studied here do not encompass all the different situations likely to occur, depending on both the release phenomenology and the meteorological conditions prevailing at time of the event, it appears that a 8 h sampling time (in coherence with the  $^{135}\text{Xe}$  half-life) is a good compromise likely to lead to a substantial gain in the amplitude of the signal to be detected without additional complexity of the operational IMS system's gas sample processing for keeping an high detection sensitivity.

### Key parameters for high electron detection performances

Table 1 gives the most important decay modes related to the four relevant radioactive xenon isotopes ( $^{131\text{m}}\text{Xe}$ ,  $^{133\text{m}}\text{Xe}$ ,  $^{133}\text{Xe}$  and  $^{135}\text{Xe}$ ) underlining that X-ray-CE coincidence counting is the most efficient way for

measuring the two metastable isotopes,  $^{131\text{m}}\text{Xe}$  and  $^{133\text{m}}\text{Xe}$ . However, their conversion electron energies, 129 and 199 keV respectively are too closed to one another to be distinguished (unless spectra are measured over time) with the current IMS  $\beta$ - $\gamma$  systems that use a plastic scintillation cell for high electron efficiency but exhibit poor energy resolution, close to 30 % at 200 keV [24]. Moreover, the coincidence between the 81 keV gamma line of  $^{133}\text{Xe}$  and its preceding beta emission on the one hand and the coincidence between the 249 keV gamma line of  $^{135}\text{Xe}$  and its preceding beta emission on the other hand, are likely to lead to strong interferences in the  $^{131\text{m}}\text{Xe}$  and  $^{133\text{m}}\text{Xe}$  electron spectra area when gated by the 30 keV X-ray line since the Xe and Cs X-rays cannot be separated with the NaI(Tl) detector.

In order to avoid these drawbacks, a new technology drastically improving the electron energy resolution has to be coupled to the NaI(Tl) detector which has the advantages of exhibiting a high photon detection efficiency, especially for X-ray at 30 keV, as well as allowing to operate at ambient temperature ensuring ease of use, especially for remote stations. A silicon detector based on the PIN diodes technology appears to be the most suitable for beta and electron measurement since it shows an excellent electron energy resolution (3.3 % at 45 keV), low electron energy threshold (close to few keV) and a proper efficiency till several hundred of keV, depending of the thickness of the silicon wafer used. However, if these



**Fig. 1** Average activity concentrations, expressed in  $\text{mBq}\cdot\text{m}^{-3}$ , matching a virtual release from the DPRK site in the time range T0–T0 + 8 days (left part, open triangle) and simulated activity

concentrations calculated over time at the JPX38 IMS site (Takasaki-Japan, black square) by varying the noble gas station sampling time from real meteorological wind fields (right part)

**Table 1** Main decay modes for the four relevant radioactive isotopes of xenon with associated emission probabilities in bracket [25]

Isotope	$^{131\text{m}}\text{Xe}$	$^{133\text{m}}\text{Xe}$	$^{133}\text{Xe}$	$^{135}\text{Xe}$
Half-life (days)	11.84	2.20	5.24	0.38
Major $\gamma$ -ray energy (keV)	163.9 (1.98 %)	233.2 (10.3 %)	81.0 (37 %)	249.8 (90 %)
K X-ray energy (keV)	30.4 (54 %)	30.4 (56.3 %)	31.7 (47.6 %)	31.7 (5.2 %)
$\beta$ Endpoint energy (keV)			346 (99 %)	905 (96 %)
Conversion electron energy (keV)	129.0 (61.0 %)	198.7 (63.5 %)	45 (53.0 %)	214 (5.7 %)

features are currently achieved for small surface detector ( $<30 \text{ mm}^2$  [26, 27], it is very challenging for a room temperature very large PIN diode (larger than  $1,000 \text{ mm}^2$ ) to achieve high performances in energy resolution ( $<10 \%$ ) and in low electron energy threshold ( $<40 \text{ keV}$ ), suitable for  $^{131\text{m}}\text{Xe}$  and  $^{133\text{m}}\text{Xe}$  CE detection. Indeed, such areas are mandatory for improving the SPALAX detection limits matching to an 8 h sampling frequency and delivering a final processed air volume of about  $10 \text{ cm}^3$  (purified and concentrated xenon in a nitrogen media).

This apparent quest for the Holy Grail results from the need to independently optimize several key linked parameters while each of them evolves in antagonistic ways leading to worsen the global performances. This is illustrated by one of the key parameters, i.e. minimization of the electronic noise of the silicon detector achieved by reducing its total capacitance. Hence, the larger silicon depletion depth the lower the detector capacitance and higher the leakage current are, which involves in return to degrade both electron energy resolution and energy threshold. The average silicon pathway for electron at 346 keV ( $^{133}\text{Xe}$   $\beta$  endpoint) is about  $300 \mu\text{m}$ . As a result, in order to optimize the detection of the  $^{135}\text{Xe}$   $\beta$  emission (Table 1) without drastically altering the electron energy resolution, it is more appropriate to target a maximum silicon thickness depletion of about  $500 \mu\text{m}$ . Once this key parameter settled, the leakage current should be minimized, especially considering the large silicon ship area ( $1,232 \text{ mm}^2$ ) required for optimizing the electron efficiencies. In order to reach the best performances for both electron energy resolution and energy threshold, stringent selection of the silicon chips for proper specifications matching high spectroscopy performances has been performed. Consequently, all the selected large silicon wafers exhibit very low leakage current,  $<20 \text{ nA}$ , and allow an excellent electron full width at half maximum close to  $10 \%$  at  $200 \text{ keV}$  while energy threshold obtained is around  $30 \text{ keV}$ , which is greatly suitable for the detection of the lower conversion electron at  $45 \text{ keV}$  ( $^{133}\text{Xe}$ ). From these key physical features CEA and Canberra Semiconductor company have jointly designed a new electron detector, hereafter described, exhibiting a low radio-impurities contamination and high performance in detection sensitivity.

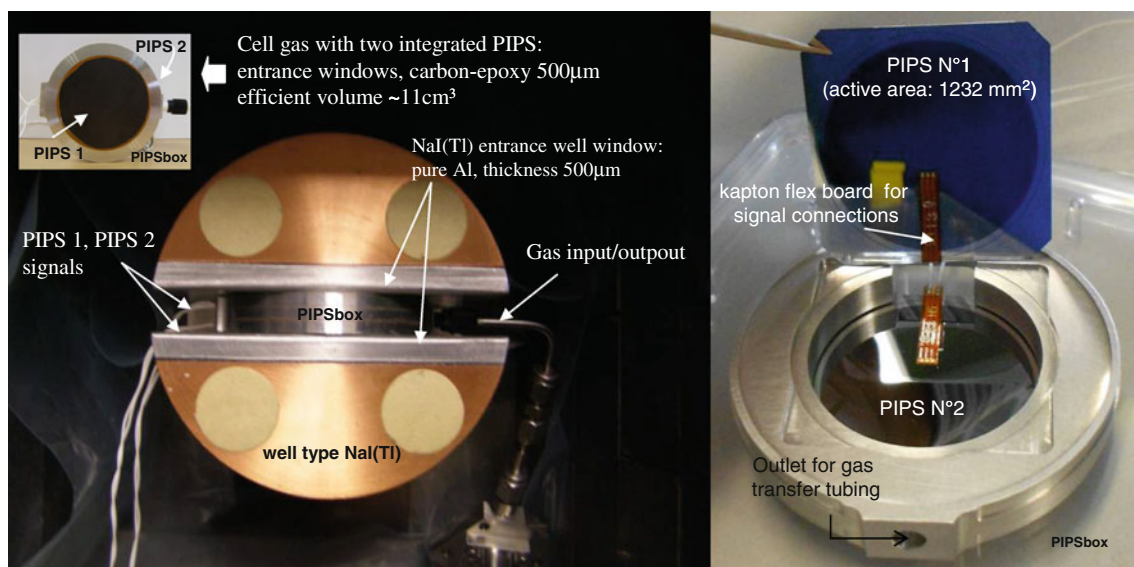
### New SPALAX<sup>TM</sup> radioxenon electron photon detection design

The detection system has been designed for operating at room temperature and in order to be coupled with a SPALAX<sup>TM</sup> gas sample process providing automatically injection and removal of gaseous xenon sample through a thin pipe. The detection system consists in a gas cell with two large passivated implanted planar silicon (PIPS, based on PIN diode technology) surrounded by a well-type NaI(Tl) crystal (Fig. 2).

The NaI(Tl) size ( $\phi 102 \times 76 \text{ mm}$  height), has been designed considering background reduction by minimizing photon detector volume ( $511 \text{ cm}^3$ ) while allowing a complete energy deposition at  $250 \text{ keV}$  ( $^{135}\text{Xe}$ ) together with maximizing the detection solid angle. The window enclosing the well crystal and facing the gas cell is constituted by a thick ( $500 \mu\text{m}$ ) pure aluminium layer, minimizing the X-ray attenuation at  $30 \text{ keV}$ . Specific care in selecting the photomultiplier tube was carried out in order to drastically reduce  $^{40}\text{K}$  impurities in the glass window components that are likely to provide significant gamma background from Compton interaction processes. Figure 3 presents the comparison between the NaI(Tl) background related to the CEA design with those currently measured for some equipments of the CTBT International Monitoring System (SAUNA and ARIX noble gas stations). As it can be observed, a gain in background reduction of at least one decade, over the Xe isotopes photon energy range (Table 1), is obtained with this new set-up.

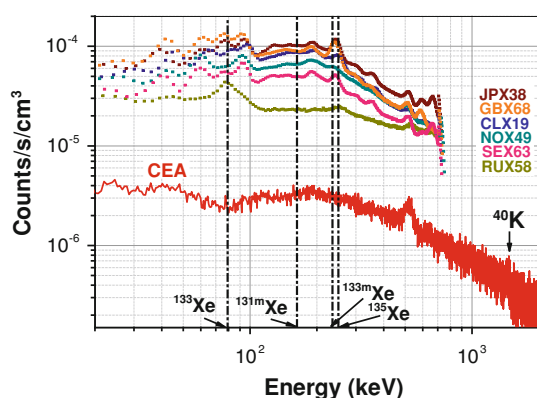
By the same token and in order to keep the background as low as possible for the whole electron-photon spectrometer, all materials composing the gas cell equipped with the PIPS (hereafter called PIPSbox) have been selected with regard to their radioactive purity and/or minimizing as low as possible their mass. As the silicon chips used for manufacturing the PIPS detectors exhibit high purity despite their large areas, the associated radioactive background is expected to be negligible. The component with the higher mass is the aluminium housing the two face-to-face PIPS<sup>TM</sup> with only  $58 \text{ g}$  owing to a sizeable active gas volume of  $11 \text{ cm}^3$ . However, this PIPSbox





**Fig. 2** New conversion electron–photon coincidence spectrometer developed by CEA/Canberra Semiconductor. View of the electron detector equipped with two passivated implanted planar silicon

(PIPSbox) surrounded by a well type low background NaI(Tl) for photon detection (*left*), internal details of the PIPSbox (*right*)



**Fig. 3** NaI(Tl) background measurement comparison between several detectors that equipped the  $\beta$ - $\gamma$  noble gas stations of the CTBT IMS network (SAUNA stations JPX38, GBX68, CLX19, NOX49, SEX63 and ARIX station RUX58) and the new detector design

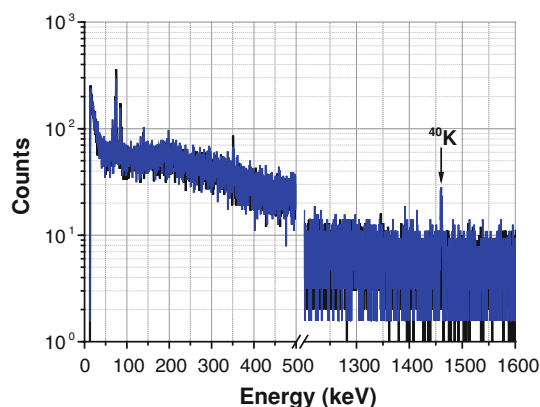
component is not the highest contributor to the background since low background aluminium is used. Hence, the three components with the expected largest activity are the carbon epoxy PIPSbox window, despite of a low thickness (500  $\mu\text{m}$ ) fitted for X-ray transmission at 30 keV higher than 95 %, the tubing dedicated to gas inlet and finally the epoxy glue used for the carbon window sealing and the PIPS<sup>TM</sup> wires for detector signals read out. The epoxy used for sealing and gluing some PIPSbox internal components is the same used by Canberra Semiconductor manufacturer for low background germanium detectors. Screening tests have led to a value of 3.5 mBq g<sup>-1</sup> for <sup>238</sup>U, which is low considering the mass used in the detector. For the electric circuit, a Kapton<sup>TM</sup> flex board was used for its advantage

of being very thin and for its low radioactive background [28]. As connectors are possible source of noise, four long wires coming out of the PIPSbox and welded to LEMO<sup>TM</sup> connectors are used for extracting signals of the two PIPS<sup>TM</sup>. Due to the complex assembly process, each PIPS<sup>TM</sup> detector has its own ground contact with the aluminium housing box. Furthermore in order to minimize possible microphonic effects, the carbon epoxy window is aluminized and sealed vacuum-tight with a conductive epoxy to be at the same potential as the ohmic back side of the PIPSbox.

As a result of this stringent detector set-up, Fig. 4 shows the resulting radioactive background of the electron detector (PIPSbox) estimated from a gamma emission spectrum using a low background germanium detector. The germanium background spectrum (black) and the PIPSbox spectrum (blue) normalized to the same acquisition time (150,000 s) are quite perfectly overlapping, except at 1,460 keV corresponding to <sup>40</sup>K traces. This extremely weak radioactive background related to the electron detector is of great importance for coincidence detection, especially for measurement of the metastable radionon (<sup>131m</sup>Xe and <sup>133m</sup>Xe) at very low level from a 30 keV X-ray gated electron spectrum, since the background in the regions of interest (ROIs) is expected to be very closed to zero.

### CE and photon efficiency, CE resolution and threshold

The intrinsic electron detection efficiency of the PIPSbox detector is linked to the solid angle subtended by the two



**Fig. 4** Germanium detector background measurement (black curve) and background spectrum (blue curve) of the PIPSbox placed on the top of the germanium detector. Both spectra normalized to the same acquisition time (150,000 s). The only gamma line detected is related to traces of  $^{40}\text{K}$ . (Color figure online)

coaxial circular and parallel PIPS<sup>TM</sup> (radius  $R_s = R_D = 39.6$  mm, distance  $h = 3.6$  mm). The solid angle can be precisely evaluated from the following converging formula used in primary standardisation laboratories [29]:

$$\frac{\Omega}{4\pi} = 2 \times \frac{R_D}{R_s} \times \frac{1}{2n} \sum_{i=1}^n \frac{\sin^2 \varphi}{\sqrt{x - \cos \varphi} \times (\sqrt{y} + \sqrt{x - \cos \varphi})}$$

in which  $x = \frac{R_s^2 + R_D^2 + h^2}{2R_s R_D}$ ,  $y = \frac{h^2}{2R_s R_D}$  and  $\varphi = (i - 0.5) \pi/n$  and  $n$  is an integer value of choice.

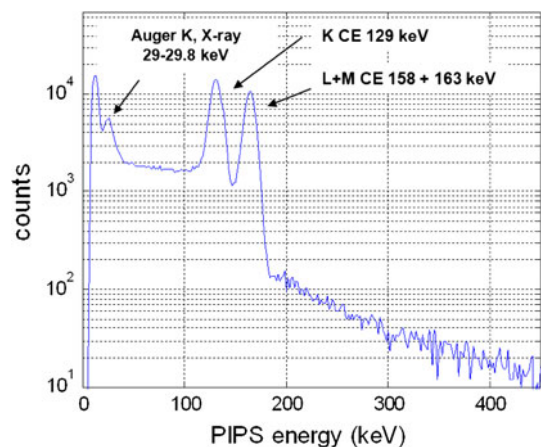
The solid angle ( $\Omega/4\pi$ ) obtained is  $0.526 \pm 0.041$ . However, a lower experimental electron detection efficiency has been determined mainly due to PIPSbox dead volume and in a lesser extent to losses induced by specific physical phenomena such as backscattering electron effects at the PIPS<sup>TM</sup> surface or between the two PIPS<sup>TM</sup> (crosstalk) as well as absorption in the gas volume (consisting in 30 % Xe and 70 % N<sub>2</sub> under a 1 bar pressure at standard conditions), although only significant for CE of  $^{133}\text{Xe}$  at 45 keV. The electron detection efficiencies have been determined using radioactive gaseous xenon standards (quasi pure  $^{131\text{m}}\text{Xe}$ , mixture of  $^{133}\text{Xe}$  and  $^{133\text{m}}\text{Xe}$ ) delivered by the Radiation Seibersdorf laboratories (Austria). Within energy range from 45 to 199 keV, the average electron detection efficiency has been found to be  $44 \pm 5$  % complying with the intrinsic efficiency previously determined from the angle solid calculation ( $52.6 \pm 8$  %).

The X-ray and  $\gamma$  detection efficiencies for gaseous sample corresponding to the spectrometer set-up previously presented (Fig. 2), have been determined with the same standards used for the electron detection efficiency calculation. The photon detection efficiency reaches  $41 \pm 5$  % and  $75 \pm 9$  % respectively at 30 and 164 keV ( $^{131\text{m}}\text{Xe}$ ) and  $60 \pm 7$  % at 81 keV ( $^{133}\text{Xe}$ ). These values are comparable to those related to the existing CTBT  $\beta$ – $\gamma$  systems.

Figure 5 presents the  $^{131\text{m}}\text{Xe}$  conversion electron response of the PIPSbox detector filled with a pure gas standard (activity: 15.3 Bq). At 129 keV conversion electron peak is very well separated from the doublet corresponding to CE at 158 and 163 keV, with probability emission of 29 and 6.7 %, respectively due to a very good energy resolution (electron full width at half maximum around 9 keV at 129 keV). The lowest electron energy likely to be detected is about 29 keV as shown Fig. 5 where Auger electron at 29 keV (probability emission: 7 %) convoluted with X-ray close to 30 keV are observable. This low electron threshold allows detection of all K CE of the four xenon relevant radioactive isotopes without any energy overlap (Table 1). For three of them ( $^{131\text{m}}\text{Xe}$ ,  $^{133\text{m}}\text{Xe}$  and  $^{133}\text{Xe}$ ), both their electron emission probability and detection efficiencies are larger than the corresponding photon detection features. Combined to a very low spectrometer background, CE-X-ray coincidence detection will therefore lead to a drastic improvement in detection sensitivity for both  $^{131\text{m}}\text{Xe}$  and  $^{133\text{m}}\text{Xe}$  and a very significant one for  $^{133}\text{Xe}$ . Considering this last isotope since electron at 346 keV ( $\beta$  end-point) is fully deposited in silicon, the  $\beta$  emission signal can be considered as enhancing the detection efficiency as discussed later. Regarding the isotope  $^{135}\text{Xe}$ , as the thickness depletion of silicon detector was optimized to 500  $\mu\text{m}$ , only a part of its  $\beta$  spectrum will be fully detected (a thickness close to 1,250  $\mu\text{m}$  would have been necessary in order to detect the  $\beta$  end-point energy at 905 keV). However, from the  $\beta$  spectrum shape it can be determined that the average  $\beta$  emission of  $^{135}\text{Xe}$  is about 300 keV [30], a value smaller to those corresponding to the maximum possible full energy absorption in the 500  $\mu\text{m}$  silicon chip, estimated at 400 keV for a normal incidence direction and straight pathway. In fact owing to the geometry of the PIPSbox the average electron pathway is larger than the normal incident one, this means that at least 60 % of the  $\beta$  emission is fully detected (lower part of the spectrum). For the higher part of the spectrum the fraction of the electron energy deposited in the silicon is unknown. But this is not a drawback because one is thinking of quantifying the  $^{135}\text{Xe}$  by analysing the gamma spectrum gated by the full electron spectrum. In that case, it only needs an electron signal whatever the energy fraction deposited in the detector. With this approach it is expected to get an efficient detection sensitivity for  $^{135}\text{Xe}$  regarding both the gamma (250 keV) probability emission (90 %) and the beta probability emission (96 %) involved in this coincidence mode analysis.

## Electronics and multi-parameter data acquisition system

Signals from both NaI(Tl) and PIPSbox detector's preamplifier are shaped with a CAEN N968 spectroscopy amplifier



**Fig. 5** Direct conversion electron of  $^{131\text{m}}\text{Xe}$  measured from the PIPSbox detector filled by an almost pure radioactive gaseous standard (15.3 Bq). Auger electron at 29 keV and X-rays close to 30 keV are also present. Energy calibration was performed using  $^{131\text{m}}\text{Xe}$  CE energies and Auger electron at 30 keV (acquisition time 57,955 s). Counts under 20 keV are caused by electronic noise

and digitalized with a FAST ComTec 7070 analog to digital converter (ADC). Each ADC signal is recorded with a multi-parameter data acquisition system from a FAST ComTec (MPA-3) unit. This MPA-3 has 4 inputs and is connected to a computer by a high-speed bus (PCI card). The MPANT software, used for signal acquisition and for spectra plotting, is recording the data from the MPA-3. This setup allows to simultaneously performing direct, coincidences and anti-coincidences measurements.

Each ADC used for electron and photon energy conversion can trigger an event by opening a coincidence window. For the radioxenons of interest, electron and photons are emitted within less than 10 ns (the largest time difference between coincidental emission of an electron and a photon related to radioxenon decays is for emission following the beta decay of  $^{133}\text{Xe}$  to an excited state of  $^{133}\text{Cs}$ , this state having a 6.36 ns half-live time). Signal shaping time used are 6  $\mu\text{s}$  for photons and 2  $\mu\text{s}$  for electronic signals (sufficient to collect the complete charge) in order to reduce dead time of the electronic acquisition system while maximizing energy resolution. Based on these features, a coincidence window time set to 10  $\mu\text{s}$  was used to record data leading to an appropriate compromise between signal loss and signal gain (random coincidences). For each analog signal larger than the ADC internal threshold (20 mV), the ADC sends a BUSY signal to the MPA-3. This BUSY signal triggers a counter waiting during the coincidence time window for BUSY signals from any ADCs. If two BUSY signals from two different ADCs are recorded during the coincidence time window, then the corresponding signals will be considered as coincident (or anti-coincident depending on the specification) and stored in a three dimensions spectrum.

Specifications can be set, as channel range for one of the ADCs signal in order to provide additional gated coincidence spectra.

### CE-X-ray coincidence detection performance for $^{131\text{m}}\text{Xe}$

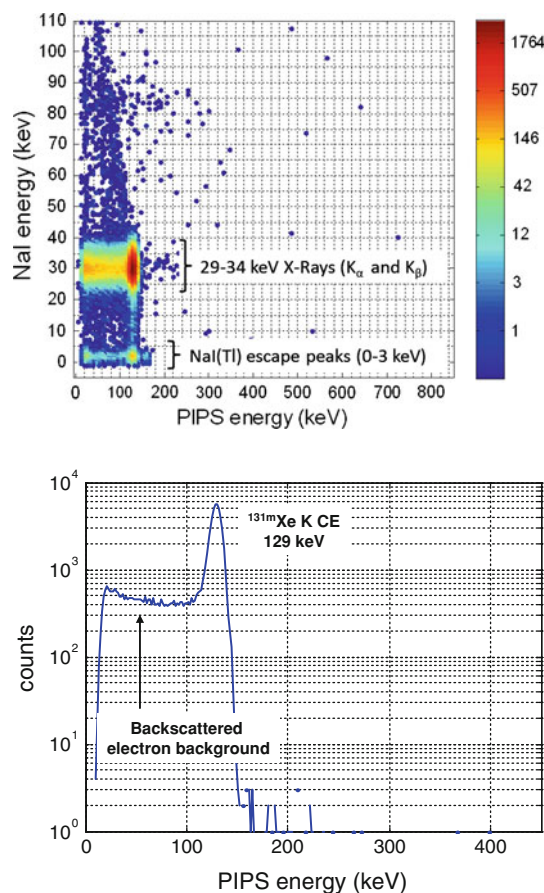
In order to have better statistics and consequently a precise view of the 3D spectra, high radioxenon activity concentration compared to the usual environmental ones have been measured for demonstrating the performances of the new detection system shielded by 5 cm thick bricks of low activity lead.

Figure 6 (upper part) shows the 3D electron-photon spectrum of a 14.5 Bq pure spike of  $^{131\text{m}}\text{Xe}$  injected in the PIPSbox. The most intense area is related to coincidence detection between X-rays close to 30–34 keV measured by NaI(Tl) and electrons measured by the PIPSbox, the red plot corresponding to coincidences with full deposit of  $^{131\text{m}}\text{Xe}$  129 keV K shell CE. The least intense area is related to coincidence events between  $^{131\text{m}}\text{Xe}$  129 keV K shell CE and  $\text{K}\alpha$ ,  $\text{K}\beta$  xenon X-rays, these coincident events are placed on the 2 keV photon energy line because the corresponding xenon X-ray has undergone an iodine X-ray escape. The iodine X-ray escape happen when a low energy photon from the sample undergoes a photoelectric interaction with a iodine atom located near the surface of the NaI(Tl) crystal. There is then a chance that the X-ray produced by the reorganization of the targeted atom escapes the crystal. For a photon of energy  $h\nu$  ( $h\nu$  being close to the sensitive material K X-ray), the total energy deposited in the detector of a photon undergoing an iodine K X-ray escape is  $h\nu - E_{\text{K X-ray}}$ . In the present case, xenon K X-ray undergoing an iodine K X-ray escape will deposit only 2 keV in the sensitive part of the detector.

Figure 6 (lower part) shows the gated X-ray ( $30 \pm 12$  keV) 129 keV K shell CE spectrum. It should be noted that 158 and 163 keV L shell CE (present in the ungated spectrum of Fig. 5) are not visible in the spectrum since they are in coincidence with 3.7 and 5.3 keV X-ray lower than NaI(Tl) energy threshold. The electron continuum towards lower energy from the 129 keV CE peak is caused by variable energy losses of electron due to interaction at the silicon chip surface and backscatter effects.

The 129 keV K CE peak from the gated spectrum (Fig. 6, lower part) has been fitted with a Gaussian function, that is a proper choice taken into account the global uncertainty budget, including the one related to the counting volume cell, on the  $^{131\text{m}}\text{Xe}$  activity standard ( $14.5 \pm 1.0$  Bq  $1\sigma$ , at the time of measurement). The associated peak efficiency for the selected coincident events has been found to be  $92 \pm 13$  count/s/kBq a much





**Fig. 6** 3D electron-photon spectrum of  $^{131\text{m}}\text{Xe}$  (upper part) and 129 keV K CE peak of  $^{131\text{m}}\text{Xe}$  gated by  $30 \pm 12$  keV X-ray area (lower part) achieved from a 14.5 Bq spike measured by the well NaI(Tl)/PIPSbox spectrometer (acquisition time: 66,061 s)

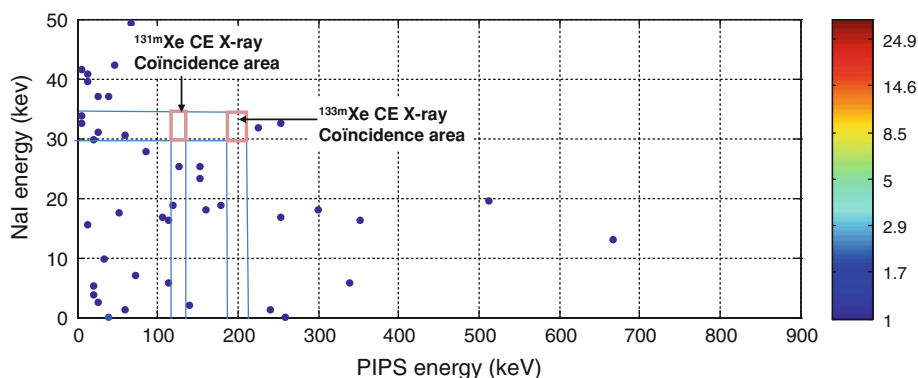
larger value compared to a recent one recently published for  $^{131\text{m}}\text{Xe}$  [31] and by the past.

In order to assess a possible memory effect of the PIPSbox likely to impact the following measurement, the PIPSbox has been removed after each experiment and connected to a bench gas transfer where it has been kept under a secondary vacuum during 10 h in order to remove the whole gas volume for eliminating all radioactive xenon

traces. Figure 7 shows the coincidence background spectrum acquired using this procedure after the  $^{131\text{m}}\text{Xe}$  spike measurement presented (Fig. 6). Although the process used is not complying with those currently use by IMS noble gas stations (for instance the SPALAX<sup>TM</sup> counting cell undergoes a vacuum of only 30 min each 24 h cycle processing), the result is very promising since not only no memory effect has been observed but also the background is drastically low, especially the ROIs matching the expected coincidence events related to  $^{131\text{m}}\text{Xe}$  and  $^{133\text{m}}\text{Xe}$ . Hence, none count in the  $^{131\text{m}}\text{Xe}$  and  $^{133\text{m}}\text{Xe}$  ROIs has been measured after more than 2 days measurement, as shown in the 3D coincidence background spectrum (Fig. 7).

Disregarding decay factors during air collection, processing and measurement (in a current IMS sampling and measurement cycle, the global correction factor for  $^{131\text{m}}\text{Xe}$  accounts for <10 %), the sensitivity of  $\beta$ - $\gamma$  detector systems is expressed as minimum detectable activity (MDA) using the simplified following formula [16, 32, 33], given for a confidence level of 95 %:  $\text{MDA} = \frac{2.71 + 4.65 \times \sqrt{B}}{t \times \epsilon_\gamma \times \epsilon_e \times P_\gamma \times P_e}$ , where  $B$  is the coincident background for the considered event area ( $B$  is determined from the X-ray gated electron spectrum),  $t$  is the acquisition time,  $\epsilon_\gamma$ ,  $\epsilon_e$ ,  $P_\gamma$ ,  $P_e$  are respectively the photon and electron detection efficiencies and their associated emission probabilities. As the NaI(Tl)/PIPSbox systems background is closed to zero and as no memory effect contributes to the background, the  $4.65 \times \sqrt{B}$  term is negligible compared to 2.71. Consequently, for a given acquisition time, the only parameters likely to improve the MDA are both a gain in the electron and photon detection efficiencies. MDAs calculated for  $^{131\text{m}}\text{Xe}$  and  $^{133\text{m}}\text{Xe}$  from a coincidence background spectrum of the well NaI(Tl)/PIPSbox system (cell filled with air under NTP condition) have been calculated to be  $(2.0 \pm 0.3) \times 10^{-3}$  Bq for 1 day of measurement. Compared to the MDA's achieved from current detection system currently integrated in the CTBT SPALAX systems, the gain using the new system is respectively of about 70 and 30 which is a major improvement.

**Fig. 7** 3D coincidence background spectrum related to the NaI(Tl)/PIPSbox system shielded by 5 cm of lead, acquired on 240,000 s with the well NaI(Tl)/PIPSbox detection system. No count were detected in both  $^{131\text{m}}\text{Xe}$  and  $^{133\text{m}}\text{Xe}$  region of interests (ROIs)





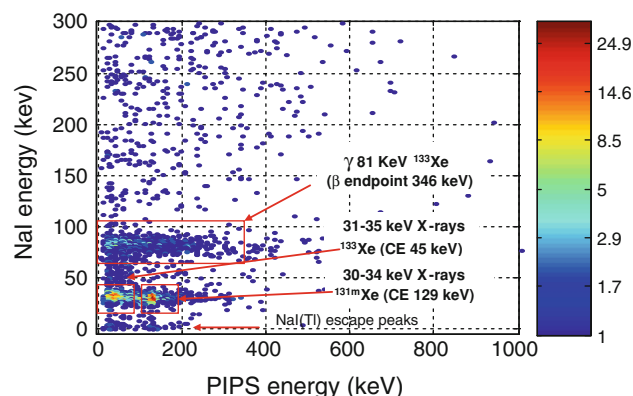
Considering a CTBT SPALAX<sup>TM</sup> noble gas system operating with a 8 h sampling time resolution and equipped with the new detection system, minimum detectable activity concentrations (MDCs) calculated for  $^{131\text{m}}\text{Xe}$  and estimated for  $^{133\text{m}}\text{Xe}$  have been found to be  $(1.8 \pm 0.3) \cdot 10^{-4} \text{ Bq} \cdot \text{m}^{-3}$  (1 day measurement basis). Compared to the MDC currently achieved by an IMS SPALAX<sup>TM</sup> system (air sampling frequency normalized to 8 h), improvement in detection sensitivities for the two metastable isotopes are respectively of a factor 30 and 10. These lower gains in MDC compared to the MDA ones are due to the fact that the final gas volume processed remains equal to  $25 \text{ cm}^3$  whatever the sampling time resolution used by the system and consequently do not comply with the PIPSbox active volume. In order to better take advantage of the new detection system performances, it will be appropriate to reduce the nitrogen media, used for flushing the gas xenon during the concentration and purification steps of the SPALAX process, present in majority in the sample (70 % of the whole amount) for fulfilling the  $11 \text{ cm}^3$  of the PIPbox cell with a sample more enriched in xenon. In return the MDCs will be greatly further enhanced (studies of such modification are under progress).

#### CE-X-ray coincidence detection performance for a mixed $^{131\text{m}}\text{Xe}$ , $^{133}\text{Xe}$ environmental sample

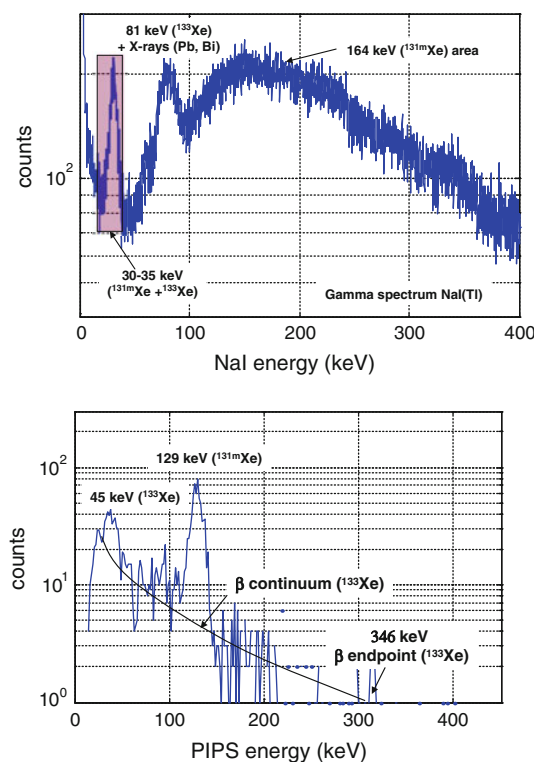
In order to evaluate spectrometry performances of the new detection system in case of a mixed xenon radioactive isotopes, the PIPSbox cell has been filled using a bench gas transfer with an air environmental sample from an archive bottle processed by a CTBT type noble gas station located in Ottawa (Canada). The activity of  $^{133}\text{Xe}$  and  $^{131\text{m}}\text{Xe}$  contained in the sample were respectively  $180 \pm 16$  and  $163 \pm 15 \text{ mBq}$  (the isotopic ratio corresponds to the signature of the Chalk River isotope production facility releases). Figure 8 shows the NaI(Tl)/PIPSbox 3D coincidence spectrum obtained with a 68,234 s acquisition time.

The former radioactive isotope  $^{133}\text{Xe}$  is detected from coincidence events of the 81 keV photon with 0–346 keV  $\beta$  emission along with the converted 81 keV  $\gamma$  transition leading to 45 keV CE in coincidence with the  $\beta$  continuum. The later ( $^{131\text{m}}\text{Xe}$ ) is detected from coincidence events between  $K\alpha$ ,  $K\beta$  X-rays and K shell CE at 129 keV as already observed in the previous chapter.

Figure 9 presents the direct NaI(Tl) X and gamma spectrum (upper part,  $^{131\text{m}}\text{Xe}$  gamma line at 164 keV is not detected) and the gated electron spectrum (lower part) by the X-ray energy window defined on the photon emission spectrum (upper part). The  $^{133}\text{Xe}$  K shell CE peak at 45 keV is clearly detected with a slight alteration of its energy resolution owing to higher predominance of energy



**Fig. 8** 3D electron-photon spectrum of  $^{133}\text{Xe}$  and  $^{131\text{m}}\text{Xe}$  acquired from a re-analysis of an archive bottle related to an environmental sample processed by a CTBT type noble gas station located in Ottawa (Canada). Acquisition time: 68,234 s



**Fig. 9** Direct NaI(Tl) photon spectrum (upper) and X-ray gated electron PIPSbox spectrum (lower) related to a re-analysis of an archive bottle related to an environmental processed air sample by a CTBT type noble gas station located in Ottawa (Canada). The electron spectrum, gated by X-ray (purple energy window) exhibits the 45 keV and 129 keV K shell CE peaks respectively related to  $^{131\text{m}}\text{Xe}$  and  $^{133}\text{Xe}$ . The CE peaks are superimposed to the  $\beta$  emission continuum related to  $^{133}\text{Xe}$  (endpoint energy at 346 keV). Acquisition time: 68,234 s. (Color figure online)

straggling at low energy following loss of energy of electrons in the  $\text{N}_2/\text{Xe}$  gas mixture. From the combination of the  $\beta$  emission and K shell CE measured from the X-ray gated electron spectrum, it is expected to achieve for  $^{133}\text{Xe}$ ,

a MDC comparable to those determined for  $^{131\text{m}}\text{Xe}$  by using a list-mode data analysis and specific offline (or even on line) post-analysis as the signals from detector preamplifiers can be digitalized and recorded event by event with amplitude and timestamp. Hence, these results underline the dependence of the  $^{131\text{m}}\text{Xe}$  MDC as a function of the  $^{133}\text{Xe}$  activity concentration, in case of a mixed sample, due to the contribution of the  $^{133}\text{Xe}$   $\beta$  continuum under the conversion electron peak at 129 keV. Future works will deal with these needed complementary studies and analysis developments.

## Conclusion

It has been successfully demonstrated that a new detection spectrometer using innovative technologies can improve key requirements for detection radionuclide monitoring (CTBT expresses a MDC  $<1 \text{ mBq.m}^{-3}$  for  $^{133}\text{Xe}$  on a 1 day measurement basis) and could be worthwhile integrated in the near future, in the frame of CTBT, to existing noble gas stations for improving detection sensitivity while allowing higher sampling frequency.

The compact CE-photon spectrometer conceived by CEA in collaboration with Canberra Semiconductor company combines a gas cell with two integrated large silicon chips for detecting electrons and a well-type NaI(Tl) embedding the cell and specifically designed for full absorption of photons up to 250 keV (higher relevant photon energy related to the radionuclide decays). The silicon technology (PIPS<sup>TM</sup>) used allows large areas ( $1,200 \text{ mm}^2$ ) while keeping a very low electron energy threshold (about 30 keV) thanks to a stringent selection of the silicon chips. Consequently, PIPSbox cell geometry allows a quite important active gas volume to be measured, close to  $11 \text{ cm}^3$  (about half the gas volume processed in a current IMS SPALAX<sup>TM</sup>). In return taking advantages over the existing noble gas systems to the excellent resolution for CE peak ( $<7 \text{ keV}$  at K shell CE 129 keV), the very low coincidence background (no count measured during 2 days), the absence of any memory effect (in the tested operational conditions) and high efficiencies for both electrons and photons, the new detection system leads to a drastic reduction of minimum detectable activities (MDAs) for radionuclides compared to existing CTBT SPALAX<sup>TM</sup> detection system. First assessments of MDAs, determined from the coincidence background spectrum achieved from the NaI(Tl)/PIPSbox spectrometer, have led to MDAs of about  $2 \times 10^{-3} \text{ Bq}$  (1 day measurement) for both metastable radioactive isotopes of xenon ( $^{131\text{m}}\text{Xe}$  and  $^{133\text{m}}\text{Xe}$ ), that is respectively about 70 and 30 times lower than those achieved previously. However, the MDCs that might be achieved by replacing the current detection system of the French noble gas system by the new one will be “only”

improved by a factor of respectively 30 and 10 (8 h sampling time) since the current SPALAX<sup>TM</sup> gas sample processing method do not allow to modify the final gas volume. Consequently, works will aim at reducing the gas media (nitrogen) much below 70 % (current concentration in the sample) by modifying the SPALAX<sup>TM</sup> sample processing and thus taking advantage of the performances of the new spectrometer to lower further the MDCs. In parallel, works will be performed to achieve precise MDCs for the other relevant radionuclides ( $^{133}\text{Xe}$ , and  $^{135}\text{Xe}$ ) taking advantage of a numeric data acquisition system (PIXIE-4) that will be coupled to the new detection system. With these new improvement, using list-mode specific data analysis, it can be expected to reach MDCs  $<1.10^{-4} \text{ Bq.m}^{-3}$  (8 h sampling time) for the four relevant radionuclides.

**Acknowledgments** The authors have greatly appreciated the help of both Seibersdorf laboratories and Health Canada teams for providing high quality of radioactive isotopes of xenon standards and environmental samples (processed by the national Canadian noble gas station located in Ottawa). We also would like to particularly thank our colleagues T. Schroettner, W. Hennig, K. Ungar and J. McIntyre for fruitful discussions on new detection technologies in the frame of detection radionuclide monitoring.

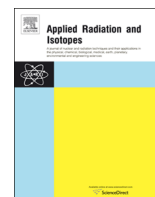
**Disclaimer** The views expressed in this publication are those of the authors and do not necessarily reflect the views of the CTBT Preparatory Commission.

**Open Access** This article is distributed under the terms of the Creative Commons Attribution License which permits any use, distribution, and reproduction in any medium, provided the original author(s) and the source are credited.

## References

1. Carrigan C, Heinle R, Hudson G, Nitao J, Zucca J (1996) Trace gas emissions on geological faults as indicators of underground nuclear testing. *Nature* 382:528–531
2. Carrigan C, Sun Y (2012) Detection of noble gas radionuclides from an underground nuclear explosion during a CTBT on site inspection. LLNL-JRNL-513175-DRAFT
3. Carrigan C, Heinle R, Hudson G, Nitao J, Zucca J (1997) Barometric gas faults and its transport along application to nuclear test-ban monitoring. In: International workshop on Mt. Unzen, Shirinubaru Japan, 25–29 May 1997. UCRL-JC-127585.
4. Lowrey J, Biegalski S, Osborne A, Deinert M (2013) Subsurface mass transport effects the radionuclide signature that are used to identify clandestine nuclear test. *Geophys Res Lett* 40:1–5. doi: [10.1029/2012/GL053885](https://doi.org/10.1029/2012/GL053885)
5. Ringbom A, Elmgren K, Lindh K, Peterson J, Bowyer T, Hayes J, McIntyre J, Paninsko M, Williams R (2009) Measurements of radionuclide in ground level air in South Korea following the claimed nuclear test in North Korea on October 9, 2006. *J Radioanal Nucl Chem* 282:773–779
6. Wen L, Long H (2010) High precision location of North Korea's 2009 nuclear test. *Seismol Res Lett* 81:26–29
7. Saey P (2009) The influence of radiopharmaceutical isotope production on the global radionuclide background. *J Environ Radioact* 100:396–406

8. Saey P, Bowyer T, Ringbom A (2010) Isotopic noble gas signatures released from medical isotope production facilities—simulations and measurements. *Appl Radiat Isot* 68:1846–1854
9. Saey P, Schlosser C, Achim P, Auer M, Axelsson A, Beckers A, Blanchard X, Brachet G, Cella L, De Geer L, Kalinowski M, Le Petit G, Petterson J, Popov V, Popov Y, Ringbom A, Sartorius H, Taffary T, Zahringer M (2010) Environmental radionuclide levels in Europe: a comprehensive overview. *Pure Appl Geophys* 167:499–515. doi:10.1007/s00024-009-0034-z
10. Saey P, Auer M, Becker A, Hoffmann E, Nikkinen M, Ringbom A, Tinker R, Schlosser C, Sonck M (2010) The influence on the radionuclide background during the temporary suspension of operations of three major medical isotope production facilities in the northern hemisphere and during the start-up of another facility in the southern hemisphere. *J Environ Radioact* 101:730–738
11. Achim P, Gross P, Le Petit G, Taffary T, Armand P (2011) Contribution of isotope production facilities and nuclear power plants to the Xe-133 worldwide atmospheric background. In: CTBT Science and Technology, Vienna, Austria, 8–10 June 2011
12. Wotawa G, Becker A, Kalinowski M, Saey P, Tuma M, Zähringer M (2010) Computation and analysis of the global distribution of the radionuclide isotope Xe-133 based on emissions from nuclear power plants and radioisotope production facilities and its relevance for the verification of the nuclear-test-ban treaty. *Pure Appl Geophys* 167:541–557. doi:10.1007/s00024-009-0033-0
13. Bowyer T, Kephart R, Eslinger P, Friese J, Miley H (2013) Maximum reasonable radionuclide releases from medical production facilities and their effect on monitoring nuclear explosion. *J Environ Radioact* 101:730–738
14. Kalinowski M, Axelsson A, Bean M, Blanchard X, Bowyer T, Brachet G, Hebel S, McIntyre J, Peters J, Pistner C, Raith M, Ringbom A, Saey P, Schlosser C, Stocki T, Taffary T, Ungar K (2010) Discrimination of nuclear explosions against civilian sources based on atmospheric xenon isotopic activity ratios. *Pure Appl Geophys*. doi:10.1007/s00024-009-0032-1
15. Ely J, Hayes J, Haas A, Harper W, Madison J, Ringbom A, Elmgren K (2012) Technology goals for a next generation radionuclide monitoring system. Pacific Northwest National Laboratory and the Swedish Defense Research Agency. Proceeding monitoring research review: ground-based nuclear explosion monitoring technologies
16. Ringbom A, Larson T, Axelsson A, Elmgren K, Johansson C (2003) SAUNA—a system for automatic sampling, processing, and analysis of radioactive xenon. *Nucl Instrum Methods Phys Res A* 508:542–553
17. Bowyer T, Abel K, Hubbard C, McKinnon A, Perkins R, Reeder P, Thompson R, Warner R (1996) Automatic radionuclide analyzer for CTBT monitoring. Pacific Northwest National Laboratory Report #PNNL-11424
18. Dubasov Y (2002) The results of xenon measuring after ARIX-01 system modification in Freiburg during August–December 2001. In: Proceedings of the informal workshop on Xenon, Papeete, Tahiti
19. Fontaine J, Pointurier F, Blanchard X, Taffary T (2004) Atmospheric xenon radioactive isotope monitoring. *J Environ Radioact* 72:129–135
20. Mekarski P, Zhan W, Ungar K, Bean M, Korpach E (2009) Monte Carlo simulation of a phosWatch detector using Geant4 for xenon isotope  $\beta$ – $\gamma$  coincidence spectrum profile and detection efficiency calculations. *Appl Radiat Isot* 67:1957–1963
21. Axelsson A, Ringbom A (2003) Xenon air activity analysis from coincidence data. FOI-R-0913-SE ISSN, 1650–1942
22. MacIntyre J, Bower T, Reeder P (2006) Calculation of minimum detectable concentration levels of radionuclides isotopes using the PNNL ARSA system. PNNL-13102
23. Le Petit G, Armand P, Brachet G, Taffary T, Fontaine J, Achim P, Blanchard X, Piwowarczyk J, Pointurier F (2008) Contribution to the development of atmospheric radionuclide monitoring. *J Radioanal Nucl Chem* 276(2):391–398
24. Reeder P, Bowyer T (1998) Xe isotope detection and discrimination using beta spectroscopy with coincident gamma spectroscopy. *Nucl Instr Meth Phys Res A* 408:582–590
25. Nuclear data. [www.nucleide.org/DDEP.html](http://www.nucleide.org/DDEP.html)
26. Hennig W, Cox C, Asztalos S, Tan H, Franz P (2011) Study of silicon detectors for high-resolution radiation measurements. Research review: ground-based nuclear explosion monitoring, XIA, LLC. Proceeding monitoring research review: ground-based nuclear explosion monitoring technologies
27. Hennig W, Cox C, Asztalos S, Tan H, Franz P, Franz P, Grudberg P, Warburton W, Huber A, Grudberg P, Warburton W, Huber A (2012) Study of silicon detector for high resolution radionuclide measurements. *J Radioanal Nucl Chem*. doi:10.1007/s10967-012-2053-y
28. Budjáš D, Gangapshev A, Gasparro J, Hampel W, Heisel M, Heusser G, Hult M, Klimenko A, Kuzminov V (2009) Gamma-ray spectrometry of ultra low levels of radioactivity within the material screening program for the Gerda experiment. *Appl Radiat Isot* 67(5):755–758
29. Pommé S, Sibbens G (2008) Alpha-particle counting and spectrometry in a primary standardisation laboratory. *Acta Chim Slov* 55:111–119
30. Cross W, Ing H, Freeman N (1983) A short atlas of  $\beta$ -ray spectra. *Phys Med Biol* 28(11):1251–1260
31. Schroettner T, Schraack I, Furch T, Kindl P (2010) A high-resolution, multi-parameter,  $\beta$ – $\gamma$  coincidence,  $\mu$ – $\gamma$  anticoincidence system for radionuclide measurement. *Nucl Instrum Methods Phys Res A* 621:478–488
32. Currie L (2004) Detection and quantification limits: basic concepts, international harmonisation, and outstanding (“low level”) issues. *Appl Radiat Isot* 61:145
33. Currie L (1968) Limits for quantitative detection and quantitative determination, application to radiochemistry. *Anal Chem* 40:586



# Improvements of low-level radioxenon detection sensitivity by a state-of-the art coincidence setup



A. Cagniant\*, G. Le Petit, P. Gross, G. Douysset, H. Richard-Bressand, J.-P. Fontaine

CEA, DAM, DIF, F-91297 Arpajon, France

## HIGHLIGHTS

- A new electron/photon spectrometer for radioxenon measurements has been developed.
- High resolution coincidence measurement of a  $^{131\text{m}}\text{Xe}$  standard is presented.
- A detection efficiency of  $22 \pm 4$  counts/s/kBq for  $^{131\text{m}}\text{Xe}$  is obtained.
- MDA of 0.9 mBq for  $^{131\text{m}}\text{Xe}$  is obtained from a 3.9 day background measurement.
- A complex environmental measurement is presented.

## ARTICLE INFO

Available online 28 November 2013

### Keywords:

Radioxenon

PIPS

HPGe

CTBTO

Electron/photon coincidence

## ABSTRACT

The ability to quantify isotopic ratios of 135, 133 m, 133 and 131 m radioxenon is essential for the verification of the Comprehensive Nuclear-Test Ban Treaty (CTBT). In order to improve detection limits, CEA has developed a new on-site setup using photon/electron coincidence (Le Petit et al., 2013. J. Radioanal. Nucl. Chem., DOI : 10.1007/s 10697-013-2525-8.). Alternatively, the electron detection cell equipped with large silicon chips (PIPS) can be used with HPGe detector for laboratory analysis purpose. This setup allows the measurement of  $\beta/\gamma$  coincidences for the detection of  $^{133}\text{Xe}$  and  $^{135}\text{Xe}$ ; and K-shell Conversion Electrons (K-CE)/X-ray coincidences for the detection of  $^{131\text{m}}\text{Xe}$ ,  $^{133\text{m}}\text{Xe}$  and  $^{133}\text{Xe}$  as well. Good energy resolution of 11 keV at 130 keV and low energy threshold of 29 keV for the electron detection were obtained. This provides direct discrimination between K-CE from  $^{133}\text{Xe}$ ,  $^{133\text{m}}\text{Xe}$  and  $^{131\text{m}}\text{Xe}$ . Estimation of Minimum Detectable Activity (MDA) for  $^{131\text{m}}\text{Xe}$  is in the order of 1 mBq over a 4 day measurement. An analysis of an environmental radioxenon sample using this method is shown.

© 2013 Elsevier Ltd. All rights reserved.

## 1. Introduction

An International Monitoring System (IMS) has been installed for the verification regime of the Comprehensive Nuclear Test Ban Treaty Organization (CTBTO). The IMS is composed of three waveforms technologies (seismic, infrasound, hydro-acoustic) and two radionuclide technologies (atmospheric aerosols and noble gas) station types spread around the globe for the detection (at 95% certainty) and the identification of any kind of nuclear test (atmospheric, underwater, surface or underground tests) of 1 kT or more within 10 days.

Low energy confined nuclear explosions are very challenging to detect. Thanks to their good diffusion characteristics, radioactive noble gases are difficult to contain. Among the noble gases emitted from a nuclear event, four radioisotopes of xenon ( $^{131\text{m}}\text{Xe}$ ,  $^{133\text{m}}\text{Xe}$ ,  $^{133}\text{Xe}$  and  $^{135}\text{Xe}$ ) have nuclear decay data (cf. Table 1) and fission yields compatible with the detection and the characterization within a few days of a nuclear explosion (Saey, 2007). They are therefore potential key indicators of a nuclear test and the IMS noble gas stations are designed for their detection. Four systems were initially developed: the ARIX, the ARSA, the SAUNA and the SPALAX (Prelovskii et al., 2007; Reeder et al., 1998; Ringbom et al., 2003; Fontaine et al., 2004). The first three setups are implementing  $\beta-\gamma$  coincidence measurements using plastic scintillators coupled to a NaI(Tl) crystal whereas the SPALAX is performing a direct HPGe  $\gamma/\text{X-ray}$  measurement.

\* Corresponding author. Tel.: +33 1 69 26 41 97.

E-mail address: [antoine.cagniant@cea.fr](mailto:antoine.cagniant@cea.fr) (A. Cagniant).



**Table 1**

Main decay mode of the four relevant radioxenon isotopes, with associated emission probabilities in bracket (Chisté et al., 2013).

Isotopes	$^{131\text{m}}\text{Xe}$	$^{133\text{m}}\text{Xe}$	$^{133}\text{Xe}$	$^{135}\text{Xe}$
Half-life (days)	11.93	2.19	5.24	0.38
Major $\gamma$ -ray energy (keV)	163.9 (2.0%)	233.2 (10.3%)	81.0 (37.0%)	249.8 (90.0%)
K $\alpha$ X-ray energy (keV)	29.7 (43.9%) (Xe)	29.7 (45.7%) (Xe)	30.9 (38.5%) (Cs)	30.9 (4.1%) (Cs)
K $\beta$ X-ray energy (keV)	33.7 (8.3%) (Xe)	33.7 (8.6%) (Xe)	35.1 (7.3%) (Cs)	35.1 (1.0%) (Cs)
$\beta$ Endpoint energy (keV)			346.4 (99.1%)	905.0 (96.0%)
K shell conversion electron energy (keV)	129.4 (61.0%)	198.7 (63.5%)	45.0 (52.9%)	214.0 (5.7%)

$^{133}\text{Xe}$  and  $^{135}\text{Xe}$  in the xenon/cesium K X-ray region ( $31 \pm 3$  keV). In order to improve the radioxenon detection, a new setup was developed by CEA and the Canberra Semiconductors company. It consists in a well-type NaI(Tl) detector and a gas cell equipped with two large area ( $1200 \text{ mm}^2$ ) Passivated Implanted Planar Silicon detectors (PIPS). First results and a complete detailed description of this setup are reported in (Le Petit et al., 2013). For laboratory purposes, the gas cell equipped with PIPS (hereafter called PIPSbox) can also be coupled to an HPGe detector. This setup allows complete distinction between ground state ( $^{135}\text{Xe}$  and  $^{133}\text{Xe}$ ) and metastable ( $^{131\text{m}}\text{Xe}$  and  $^{133\text{m}}\text{Xe}$ ) xenon thanks to the high resolution of the HPGe, and complete discrimination between  $^{131\text{m}}\text{Xe}$  and  $^{133\text{m}}\text{Xe}$  thanks to the high energy resolution of the PIPS detectors. Additionally, the photon energy resolution allows clear separation between radon progenies and radioxenon peaks. This is particularly useful for the detection of low-level of radioxenon in an environmental sample containing trace amounts of radon and its progenies.

## 2. Detection technique

The detection of the four radioxenon isotopes is implemented in two different ways depending on the nuclide: one will quantify  $^{131\text{m}}\text{Xe}$  or  $^{133\text{m}}\text{Xe}$  by analyzing a xenon K $\alpha$  X-ray gated electron spectrum, whereas  $^{133}\text{Xe}$  and  $^{135}\text{Xe}$  will be quantified by analyzing  $\beta$ -gated photon spectra. The result from the  $\beta$ -gated photon spectrum could be compared to the analysis of a cesium K $\alpha$  X-ray gated electron spectrum. This is mainly relevant for  $^{133}\text{Xe}$  which has an internal conversion coefficient of 1.43 (for a K-CE at 45 keV) compared to 0.06 for  $^{135}\text{Xe}$ .

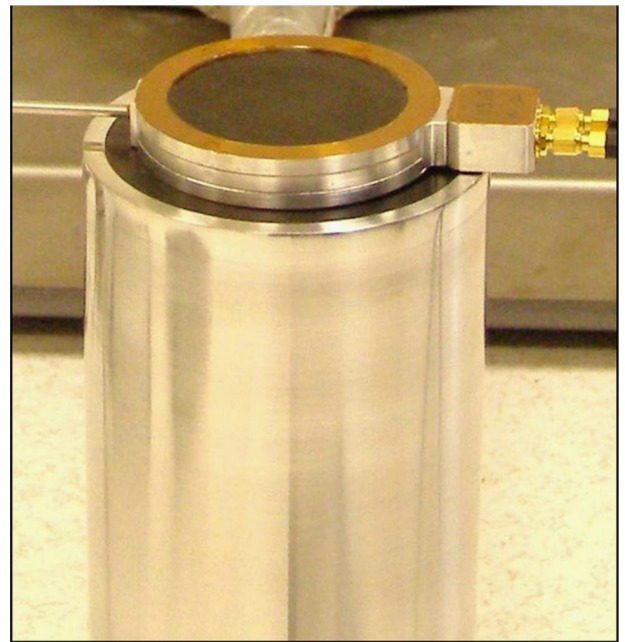
Activities can be calculated from the modified classical formula (Knoll, 2010):

$$A = \frac{C}{KT_{\text{acq}} P_{\text{decay}} \epsilon_{\text{photon}} \epsilon_e} \quad (1)$$

where  $K$  is a correction factor (in our case,  $K$  is correcting the decay during counting),  $P_{\text{decay}}$  is the probability of the considered event,  $\epsilon_{\text{photon}}$  and  $\epsilon_e$  are the photon and electron detection full-energy-peak (FEP) efficiency respectively,  $T_{\text{acq}}$  is the acquisition time and  $C$  are the net counts corresponding to the considered event.

The corresponding event probabilities can be calculated, as follows:

- For the  $^{131\text{m}}\text{Xe}$  isotope, the probability of having a 129.4 keV K-shell conversion electron (K-CE) followed by a 29.7 keV K $\alpha$  X-ray is 43.9%, as we must have a 129 keV K-CE for each K X-ray measured.
- For  $^{133\text{m}}\text{Xe}$ , the probability of having a 198.7 keV K-shell conversion electron (K-CE) followed by a 29.7 keV K $\alpha$  X-ray is 45.7%, for the same reason as for  $^{131\text{m}}\text{Xe}$ .
- For  $^{133}\text{Xe}$ , the probability of having an electron from its  $\beta$  spectrum ( $E_{\text{electron}} \in [0; 346 \text{ keV}]$ ) followed by an 81 keV photon is 37.0%, as all  $\beta$  particles from  $^{133}\text{Xe}$  have an energy lower than 346 keV. And the probability of having a 45.0 keV



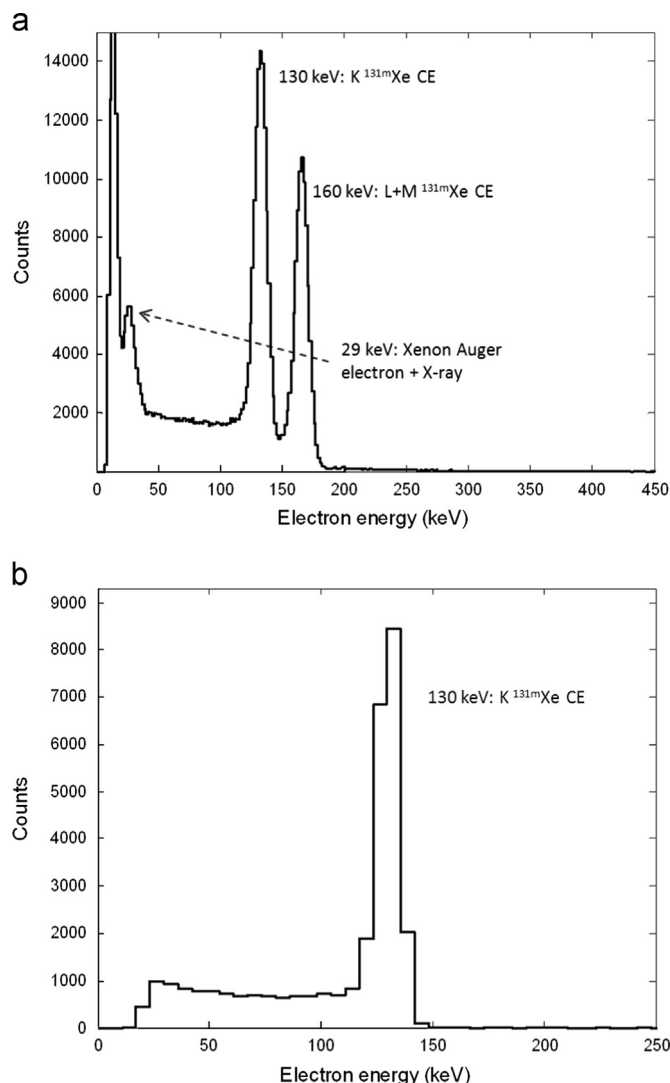
**Fig. 1.** Picture showing the PIPSBox (electron detection) on top of the HPGe detector (photon detection).

K-shell conversion electron (K-CE) followed by a 30.9 keV K $\alpha$  X-ray is 38.5% (we cannot distinguish the two K-CE of  $^{133}\text{Xe}$ : 45.0 keV and 43.6 keV (0.41%)).

- For the  $^{135}\text{Xe}$  isotope, the probability of having an electron from its  $\beta$  spectrum ( $E_{\text{electron}} \in [0; 905 \text{ keV}]$ ) followed by a 249.8 keV photon is 90.1% (as all  $\beta$  particles from  $^{135}\text{Xe}$  have an energy lower than 905 keV).

## 3. Experimental setup

The detection setup is composed of the PIPSBox presented in (Le Petit et al., 2013) and a BEGe 5030 HPGe detector from the Canberra Semiconductors company, a picture of the setup is shown in Fig. 1. The PIPSBox is an  $11 \text{ cm}^3$  (active volume) gas cell (under a pressure lower than 900 mBar) equipped with two  $500 \mu\text{m}$  thick and  $1200 \text{ mm}^2$  large PIPS detectors dedicated to the electron measurement. The cell is made out of low background materials; it is fitted on both faces with thin carbon epoxy window ( $600 \mu\text{m}$ ).  $500 \mu\text{m}$  thick PIPS detectors allow full energy deposition of electrons up to 400 keV, while keeping a good electron resolution (11 keV full width at half maximum (FWHM) at 130 and 160 keV) as shown in Fig. 2. The BEGe 5030 is a High Purity Germanium detector (HPGe) with a 30 mm thick and  $50 \text{ cm}^2$  area crystal. It has a typical FEP efficiency of 20% and an energy resolution lower than 650 eV at xenon and cesium K X-ray energies. The detectors are shielded by a first 5 cm layer of low



**Fig. 2.** Two spectra resulting from a 58,000 s measurement of a 15.3 Bq <sup>131m</sup>Xe standard provided by Seibersdorf Laboratory (Austria). (a) Measured electron spectrum of <sup>131m</sup>Xe, showing Auger electron peak at 29 keV, K-CE peak at 129 keV and L- and M- CE peak around 160 keV. (b) Xenon K $\alpha$  X-ray gated [26 keV; 30.5 keV] electron spectrum showing the 129 keV K-CE of the <sup>131m</sup>Xe.

activity lead ( $< 3$  Bq/kg of <sup>210</sup>Pb), and a second 10 cm layer of regular lead.

The signals are shaped by dedicated CAEN N968 spectroscopy amplifiers and digitalized by a FAST ComTec 7070 analog-to-digital converter (ADC) for the two PIPS and 7072T for the HPGe. The digitalized peaks are recorded on separate channels of a multi-parameter data acquisition system from FAST ComTec, the MPA-3. Coincidence windows between the channels are of 10  $\mu$ s. Each signal recorded in an ADC will trigger a BUSY signal that starts a clock in the MPA-3 module. Every signal arriving during the following 10  $\mu$ s in any ADC will be considered as in coincidence with the first signal and stored in the corresponding 3-D coincidence spectrum. Additionally, one can define an energy window in a spectrum (typically around the xenon and cesium X-rays for the HPGe, and on one of the  $\beta$  spectra for the PIPS) and will obtain a gated coincidence spectrum.

For simplification purposes, the results presented are spectra using a single PIPS detector. This detector was calibrated in energy using a <sup>127</sup>Xe standard provided by the LNHB (Cagniant et al., 2013). The <sup>127</sup>Xe isotope is challenging to measure because of multiple summation effects, but has convenient K-CE energies at

112.1 keV (1.5%), 138.9 keV (3.7%), 169.7 keV (6.6%) and 341.8 keV (0.3%) for energy calibration.

#### 4. Standard measurement and detection limit for <sup>131m</sup>Xe

First estimations of the detection limit for <sup>131m</sup>Xe were performed by measuring the coincidence spectra of a pure <sup>131m</sup>Xe standard and the background in the corresponding region of interest.

A  $15.3 \pm 1.1$  Bq <sup>131m</sup>Xe standard provided by Seibersdorf Laboratories (Austria) was measured for 57,950 s. Corresponding results are shown in Fig. 2. The top of Fig. 2(part a) is the direct electron spectrum measured by the PIPS; it demonstrates the good resolution of the PIPS detector (11 keV FWHM at 130 (K-CE peak) and 160 keV (L- and M-CE peak)) and its low energy threshold as we can detect the xenon Auger electron emission at 29 keV. The bottom of Fig. 2(part b) is the xenon K $\alpha$  X-ray gated [26 keV; 30.5 keV] electron spectrum. The only peak present is the 129 keV K-shell conversion electron, as Auger electrons are not coincident with any photon and the L- and M-CE are coincident with lower energy X-rays. The tail between 30 and 130 keV corresponds to electrons depositing energy in the gas volume before hitting the PIPS, those counts are 38% of the total <sup>131m</sup>Xe events in the xenon K $\alpha$  X-ray gated coincidence spectrum. From this measurement, we obtained a roughly calculated coincidence efficiency of  $22 \pm 4$  counts/s/kBq. This was calculated on the following Region Of Interest (ROI) of the coincidence spectrum: [120 keV; 140 keV] for the electron signal and [26 keV; 30.5 keV] for the photon signal. Uncertainty on the efficiency is resulting from the uncertainty on the <sup>131m</sup>Xe standard activity and on the coincidence peak area determination. This is a significantly higher value than the one that can be found in Schroettner et al. (2010).

A 3.92 day background measurement was performed using this experimental setup. On a first approximation, detection limits are classically defined by Currie (1968) as:  $2.71 + 4.65 \sqrt{B}$  where  $B$  is the background in the regions of interest (ROI) of the corresponding nuclide, when the confidence level is set to 95%. In our case, as no counts are detected in the ROI of <sup>131m</sup>Xe during the background measurement, the detection limit has to be determined differently. The ROI for the calculation of the background was changed to: [110 keV; 150 keV] for the electron signal and [18 keV; 38 keV] for the photon signal (i.e. the background was calculated on a 10 times larger area). As in this enlarged ROI the background was found to be 4 counts, it was decided to use 4/10 counts as the background in the ROI of <sup>131m</sup>Xe. For such a low background, Poisson statistics give (for a confidence level of 95%) a detection limit of 6.3 counts (Gilmore, 2008). Using this value, the minimum detectable activity (MDA) can be estimated as follow for the metastable radioxenon:

$$MDA = \frac{6.3}{K \times T \times \epsilon_{coinc}} \quad (2)$$

where  $K=0.9$  (decay correction factor of <sup>131m</sup>Xe during 3.9 days),  $T$  is the acquisition time and  $\epsilon_{coinc}$  is the coincidence detection efficiency for the considered radioxenon, determined with the standard measurement ( $\epsilon_{coinc} = P_{decay} \times \epsilon_{photon} \times \epsilon_e$  as defined for Eq. (1)). With the coincidence detection efficiency determined in the previous paragraph, we obtained a roughly estimated MDA of 0.9 mBq after 3.9 days of measurement.

#### 5. Environmental radioxenon measurements

Measurements with pure radioxenon standards are not sufficient enough to prove the robustness of this setup. Typical environmental samples are composed of mixed radioxenon, and other radionuclides like radon and its progenies. For a photon/electron environmental radioxenon measurement, the crosstalk between the 29.7 keV and

the 30.9 keV photon-gated electron spectra, and the crosstalk between photon peaks at 77 keV and 241 keV (respectively  $^{214}\text{Pb}$  X-rays and  $\gamma$  emission) in a  $\beta$ -gated photon spectrum are the main

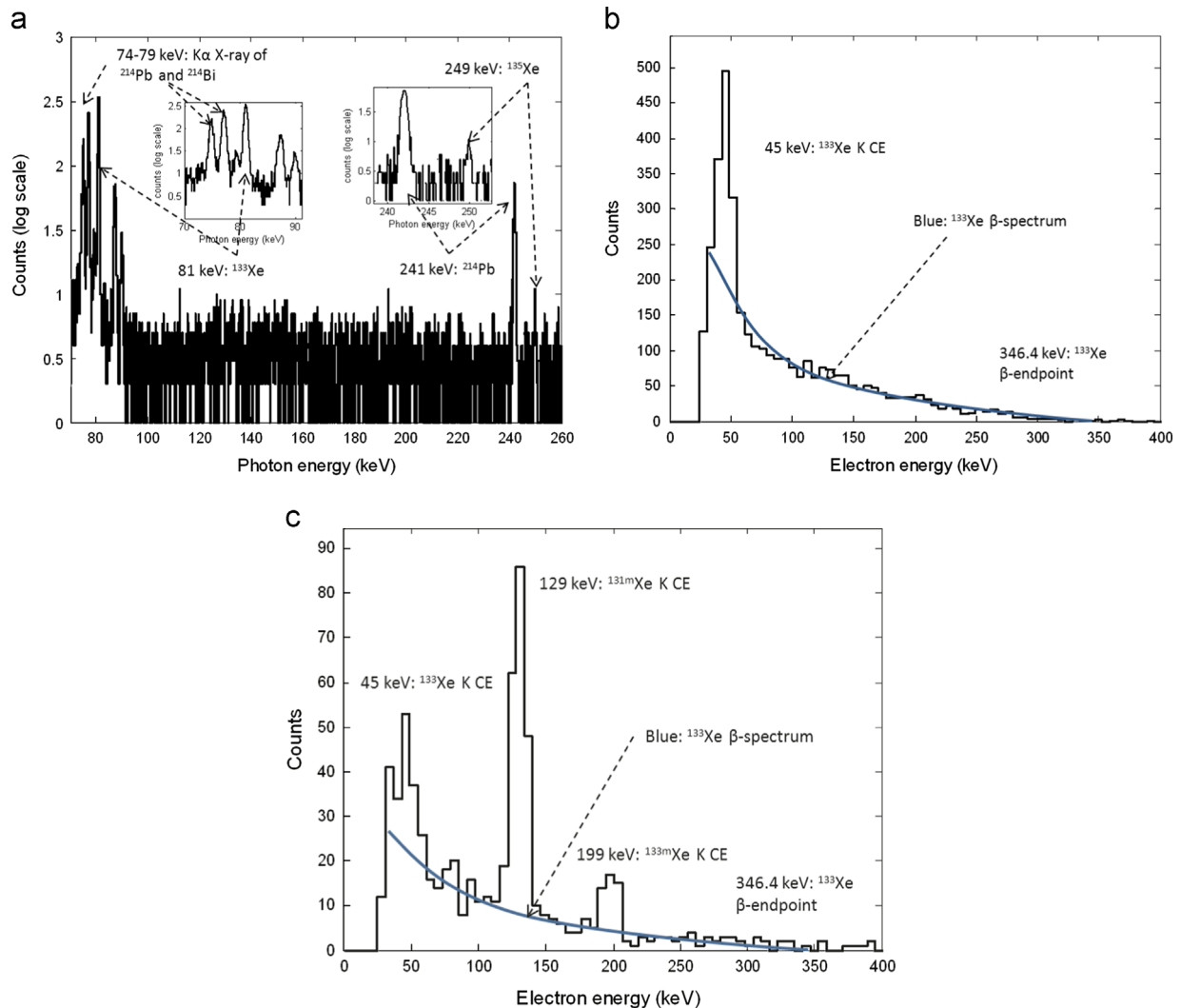
causes of false signals (see Table 2). Radioxenon environmental samples from air collection were measured using the PIPSbox/HPGe setup just after their characterization from a SPALAX noble gas

**Table 2**

Major line of electron emitters radon progenies, with associated emission probabilities in bracket (Chisté et al., 2013).

Isotopes	$^{214}\text{Pb}$	$^{214}\text{Bi}$
Half-life (min)*	26.8	19.9
Major $\gamma$ -ray energies (keV)	242 (7.5%) 295 (19.2%) 352 (37.1%)	609 (46.1%) 1120 (14.9%)
K $\alpha$ X-ray energy (keV)	77.1 (10.5%) 74.8 (6.3%)	79.3 (0.7%) 76.9 (0.4%)
K $\beta$ X-ray energy (keV)	87.3 (3.6%)	89.8 (0.2%)
Major $\beta$ endpoint energies (keV)	667 (46.5%) 724 (41.1%)	1506 (17.1%) 1540 (17.5%) 3270 (19.7%)
Major K shell conversion electron energy (keV)	151 (5.3%) 205 (7.2%) 261 (9.3%)	

\*  $^{214}\text{Pb}$  and  $^{214}\text{Bi}$  are populated by the decay of their parent nuclide  $^{222}\text{Rn}$  (3.8 days half-life).



**Fig. 3.** Environmental radioxenon sample measured for 405,650 s. (a)  $\beta$ -gated photon spectrum showing the 81 keV  $\gamma$  emission of the  $^{133}\text{Xe}$  (see upper left zoom) and the 249 keV  $\gamma$  emission of the  $^{135}\text{Xe}$  (see upper right zoom). (b) Cesium K $\alpha$  X-ray gated (30 to 32 keV) electron spectrum, showing the  $\beta$  spectrum (in blue, 346 keV for the  $\beta$  endpoint) and 45 keV K-CE of the  $^{133}\text{Xe}$ . One can observe a small peak at 130 keV corresponding to a limited amount of  $^{131\text{m}}\text{Xe}$  detected in this photon energy window. (c) Xenon K $\alpha$  X-ray gated (28 to 30 keV) electron spectrum, showing well separated K-CE at 129 keV for  $^{131\text{m}}\text{Xe}$  and at 199 keV for  $^{133\text{m}}\text{Xe}$ , with a part of the  $^{133}\text{Xe}$  ( $\beta$  spectrum in blue and 45 keV K-CE) interfering in the photon energy window. (For interpretation of the references to color in this figure legend, the reader is referred to the web version of this article.)

station (IMS type) located at Bruyères le Châtel (CEA center) 40 km south from Paris. Fig. 3a–c show the properly gated coincidence spectra resulting from a detection of the four xenon isotopes, originating from a radioxenon emission from the IRE (Institut des Radioéléments), Fleurus (Belgium) medical radioisotope production facility (Saey, 2010; Achim, 2007).

Fig. 3a shows the  $\beta$ -gated photon spectrum in the  $^{133}\text{Xe}$  and  $^{135}\text{Xe}$  energy region (from 70 keV to 260 keV) and zooms in the corresponding ROI. In Fig. 3b, the cesium  $K\alpha$  X-ray gated electron spectrum is shown, exhibiting the K-CE peak of  $^{133}\text{Xe}$  at 45.0 keV superimposed on its  $\beta$  spectrum. Both  $\beta$ -gated 81.0 keV photon peak (see zoom in the upper left region of Fig. 3a) and cesium  $K\alpha$  X-ray gated 45.0 keV K-CE peak (see Fig. 3b) have the same event probability, but the presence of bismuth and lead X-rays in the first region of interest and the low crosstalk in the second one would make this last event the most suitable for the quantification of the  $^{133}\text{Xe}$ . This is nuanced by the fact that the photon detection efficiency of the HPGe is larger at 81.0 keV than at 30.9 keV.

In Fig. 3a, the  $\beta$ -gated photon ROI of  $^{135}\text{Xe}$  can also be seen. Because of its short half-life and its weak internal conversion coefficient, it was not possible to detect a K-CE peak in the cesium  $K\alpha$  X-ray gated electron spectrum (in Fig. 3b). For a low amount of  $^{135}\text{Xe}$ , the only suitable option for its detection is the analysis of the 249.8 keV  $\beta$ -gated photon ROI (see zoom in the upper right region of Fig. 3a).

Finally, Fig. 3c shows the xenon  $K\alpha$  X-ray gated electron spectrum, exhibiting the K-CE peaks of  $^{131\text{m}}\text{Xe}$  at 129.4 keV and  $^{133\text{m}}\text{Xe}$  at 198.7 keV. Here one can see the clear separation between the two metastable radioxenon isotopes, whereas this was not achieved with the direct  $\gamma$  spectrum. This spectrum also shows some electrons (conversion or  $\beta$ ) coming from  $^{133}\text{Xe}$ ; this is due to a limited but still present crosstalk between the 29.7 keV and 30.9 keV X-ray peaks.

## 6. Conclusion and perspectives

It has been demonstrated that by using a specially designed 11 cm<sup>3</sup> gas cell equipped with large PIPS detectors, it was possible to discriminate radioxenon isotopes  $^{131\text{m}}\text{Xe}$ ,  $^{133\text{m}}\text{Xe}$ ,  $^{133}\text{Xe}$  and  $^{135}\text{Xe}$  from each other and from radon and its progenies background as well. Background measurement has shown that both  $\beta/\gamma$  and X-ray/K-CE conversion spectra exhibit no peaks for a 3.9 day acquisition. Additionally, first rough estimations of coincidence detection efficiency and MDA were calculated for  $^{131\text{m}}\text{Xe}$ , providing good results. The MDA for pure  $^{131\text{m}}\text{Xe}$  is in the order of 2 mBq for a one day measurement, which is about two orders of magnitude better than the MDA of the current CTBT noble gas SPALAX system.

Future work will include precise determination of detection efficiency and MDA for other radioxenon isotopes, using either standards or environmental measurements. Subtracting the  $^{133}\text{Xe}$   $\beta$  background in the xenon  $K\alpha$  X-ray gated electron spectrum (see Fig. 3c), relying on the K-CE peak height in the two  $K\alpha$  X-ray gated electron spectra (see Fig. 3b and c), may still provide better sensitivity for the metastable xenon, and additional work will be done. Finally, the laboratory will be equipped before the end of the year with an optimized low background shield fitted with two HPGe detectors mounted face to face in order to improve the coincidence energy efficiency. Background spectra over 7 days will

be measured and are expected to be lower, and the use of two HPGe on each face of the PIPSbox will increase the photon detection efficiency (Jutier and Douysset, 2012). These two points will probably provide an ultra-low MDA for the detection of radioxenon.

## Disclaimers

The views expressed in this publication are those of the authors and do not necessarily reflect the view of the CTBTO Preparatory Commission.

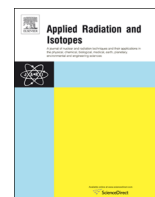
## Acknowledgments

The authors are very thankful to the Seibersdorf Laboratory for providing us xenon standards. We would also like to thank again our colleagues T. Schroettner, G. Heusser and B. Schultz for useful discussions on radioxenon, coincidence measurements, and low background design. This work was financially supported by the French ministry of defense, DGA, office for Advanced Research and Innovation.

## References

- Achim, P., Bellivier, A., Armand, P., Taffary, T., Fontaine, J.-P., Piwowarczyk, J.-C., 2007. Contributions of xenon release in the atmosphere from radionuclide production facilities and Nuclear power plants to the detection of  $^{133}\text{Xe}$  by Spalax systems in Western Europe. In: Proceedings of HARMO'11, 2–5 July 2007, Cambridge, UK, pp. 180–186.
- Cagniant, A., Le Petit, G., Gross, P., Richard-Bressand, H., Fontaine, J.-P., Douysset, G., 2013. On the use of  $^{127}\text{Xe}$  Standards for the Calibration of CTBTO Radioxenon Measurement Stations and Support Laboratories. To be Published.
- Chisté, V., Bé, M.M., Galan, M., 2013. Radionuclide Database. Accessed in June 2013 at: [www.nucleide.org/DDEP.html](http://www.nucleide.org/DDEP.html).
- Currie, L.A., 1968. Limits for qualitative detection and quantitative determination. Anal. Chem. 40, 586–593.
- Fontaine, J.-P., Pointurier, F., Blanchard, X., Taffary, T., 2004. Atmospheric xenon radioactive isotope monitoring. J. Environ. Radioact. 72, 129.
- Gilmore, G., 2008. Practical Gamma-ray Spectrometry, second ed. John Wiley and Sons, New York.
- Jutier, C., Douysset, G., 2012. Performance assessment by Monte Carlo simulations of a prospective assembly of up to three HPGe detectors designed for superior detection efficiency and sensitivity. Appl. Radiat. Isot. 70, 1969–1973.
- Knoll, G.F., 2010. Radiation Detection and Measurement, fourth ed. John Wiley and Sons, New York.
- Le Petit, G., Cagniant, A., Morelle, M., Gross, P., Achim, P., Douysset, G., Taffary, T., Moulin, C., 2013. Innovative concept for a major breakthrough in atmospheric radioactive xenon detection for nuclear explosion monitoring. J. Radioanal. Nucl. Chem., <http://dx.doi.org/10.1007/s10697-013-2525-8>.
- Prelovskii, V.V., Kazarinov, N.M., Donets, A.Y., Popov, V.Y., Popov, I.Y., Skirda, N.V., 2007. The ARIX-03F mobile semiautomatic facility for measuring low concentrations of radioactive xenon isotopes in air and subsoil gas. Instrum. Exp. Tech. 50, 393–397.
- Reeder, P.L., Bowyer, T.W., Perkins, R.W., 1998. Beta-gamma counting system for Xe fission products. J. Radioanal. Nucl. Chem. 235, 89–94.
- Ringbom, A., Larson, T., Axelsson, A., Elmgren, K., Johansson, C., 2003. SAUNA—a system for automatic sampling, processing, and analysis of radioactive xenon. Nucl. Instrum. Methods Phys. Res., Sect. A 508, 542–553.
- Saey, P.R.J., 2007. Ultra-low-level measurements of argon, krypton, and radioxenon for treaty verification purposes. Esarda Bull. 36, 42–56.
- Saey, P.R.J., 2010. Environmental radioxenon levels in Europe: a comprehensive overview. Pure Appl. Geophys. 167, 499–515.
- Schroettner, T., Schraick, I., Furch, T., Kindl, P., 2010. A high-resolution, multi-parameter, beta-gamma coincidence, mu-gamma anticoincidence system for radioxenon measurement. Nucl. Instrum. Methods Phys. Res., Sect. A 621, 478–488.





# On the use of $^{127}\text{Xe}$ standards for the quality control of CTBTO noble gas stations and support laboratories



A. Cagniant<sup>a,\*</sup>, G. Le Petit<sup>a</sup>, B. Nadalut<sup>b</sup>, P. Gross<sup>a</sup>, H. Richard-Bressand<sup>a</sup>, J.-P. Fontaine<sup>a</sup>, G. Douysset<sup>a</sup>

<sup>a</sup> CEA, DAM, DIF, F-91297 Arpaçon, France

<sup>b</sup> Preparatory Commission for the Comprehensive Nuclear Test Ban Treaty Organization, Provisional Technical Secretariat, P.O. Box 1200, 1400 Vienna, Austria

## HIGHLIGHTS

- Two new electron/photon spectrometer for radionuclide measurements has been developed.
- Two high resolution coincidence measurements of a  $^{127}\text{Xe}$  standard are presented.
- X-ray gated electron spectra and 2D photon/electron coincidence spectra are detailed.
- Comparison with another system (SAUNA) is presented.
- The use of  $^{127}\text{Xe}$  for the QA/QC of Noble Gas station is commented.

## ARTICLE INFO

### Article history:

Received 27 November 2013

Received in revised form

4 February 2014

Accepted 5 February 2014

Available online 6 March 2014

### Keywords:

$^{127}\text{Xe}$  radionuclide

Photon/electron coincidence

CTBTO

## ABSTRACT

$^{127}\text{Xe}$  has a longer half-life than  $^{131\text{m}}\text{Xe}$ , it can be easily purely produced and it is present in the environment at very low level. For these reasons,  $^{127}\text{Xe}$  is supposed to be a convenient quality control radionuclide for remote noble gas stations of the International Monitoring System (IMS) network. As CEA/DAM has recently developed two new photon/electron setups for low-level detection of  $^{131\text{m}}\text{Xe}$ ,  $^{133\text{m}}\text{Xe}$ ,  $^{133}\text{Xe}$  and  $^{135}\text{Xe}$ , we took the opportunity to test these setups for the measurement of a  $^{127}\text{Xe}$  standard. The results and a detailed description of these measurements are presented in this paper. They illustrate the complexity of  $^{127}\text{Xe}$  decay, emitting simultaneously several  $\gamma$ , X-rays, conversion electrons and Auger electrons; this results in highly summated coincidence spectra. The measurements performed provide precise electron energy calibration of the setups. The count rate of electrons in coincidence with iodine  $K\alpha$  X-rays was found to be surprisingly low, leading to the study of electron-gated photon spectrum. Finally, a comparison of three photon/electron coincidence spectra obtained with three different setups is given. The use of  $^{127}\text{Xe}$  as a standard for energy calibration of IMS noble gas station is possible, but it appears to be quite complicated for efficiency check of noble gas station equipped with  $\beta/\gamma$  detectors.

© 2014 Elsevier Ltd. All rights reserved.

## 1. Introduction

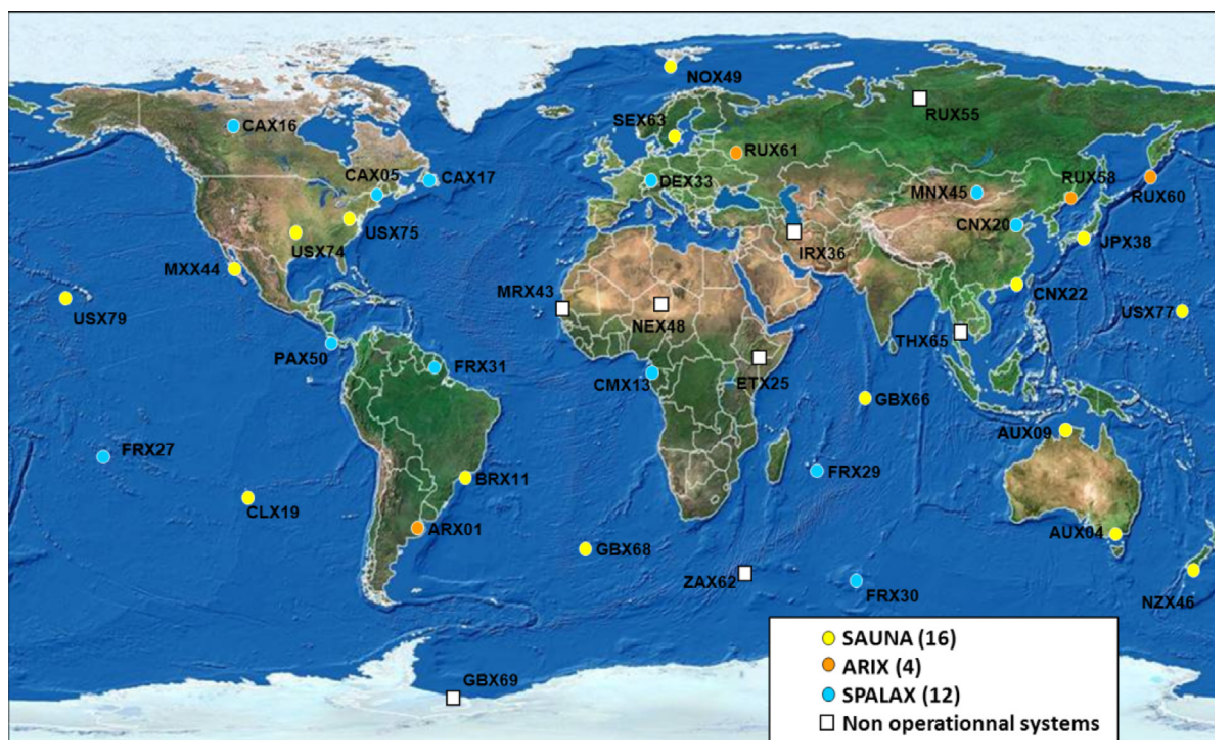
An International Monitoring System (IMS) is being installed for the verification regime of the Comprehensive Nuclear Test Ban Treaty (CTBT). When completed, the International Monitoring System will consist of 321 monitoring stations worldwide, supported by 16 radionuclide laboratories in compliance with the CTBT (CTBTO, 1996). These 337 facilities will operate in 89 countries around the world, monitoring the planet continuously for any sign of a nuclear explosion. The IMS uses four complementary verification methods, utilizing the most

modern technologies available. Seismic, hydroacoustic and infrasound stations monitor underground, the oceans and the atmosphere respectively; radionuclide stations detect radioactive debris from atmospheric or underwater nuclear explosions or noble gases from underground explosions. The radionuclide technique constitutes the “smoking gun” of whether an explosion was actually nuclear or not. A Global Communications Infrastructure is in place, to send raw data in near real time from the IMS facilities to IDC in Vienna for processing and analysis.

The radionuclide component of the international monitoring network is under construction; when completed it will consist of 80 radionuclide stations (RN) constituted by air samplers to detect and measure particulate radionuclides suspended in air, 40 of which will also be equipped with Noble Gas detection systems (NG, see Fig. 1). Additionally, the RN/NG network will be supported

\* Corresponding author.

E-mail addresses: [antoine.cagniant@cea.fr](mailto:antoine.cagniant@cea.fr), [antoinecagniant@hotmail.com](mailto:antoinecagniant@hotmail.com) (A. Cagniant).



**Fig. 1.** Status of the noble gas station network of the International Monitoring System (on November 2013). SAUNA and ARIX systems are implementing  $\beta/\gamma$  coincidence measurements, whereas SPALAX systems are implementing X and  $\gamma$  emissions spectrometry.

by 16 Radionuclide Laboratories. The radionuclide network was designed by experts to allow a capability of 90% detection within approximately 14 days for a 1 kt nuclear explosion in the atmosphere or from venting by an underground or underwater detonation.

Low energy confined nuclear explosions are very challenging to detect. Thanks to their good diffusion characteristics, radioactive noble gases are difficult to contain. Among the noble gases emitted from a nuclear event, four radioisotopes of xenon ( $^{131\text{m}}\text{Xe}$ ,  $^{133\text{m}}\text{Xe}$ ,  $^{133}\text{Xe}$  and  $^{135}\text{Xe}$ ) have nuclear decay data (cf. Chisté et al.) and fission yields compatible with the detection and the characterization within few days up to some weeks (in certain cases) after a nuclear explosion (Saey, 2007). They are therefore potential key indicators of a nuclear test and the IMS noble gas stations are especially designed for their detection. The International Noble Gas Experiment (INGE) was established in 1999 to test the measuring of radionuclide noble gases released by nuclear explosions. Four measurement systems were included in the experiment: the United States' ARSA (Automated Radioxenon Sampler-Analyzer); Sweden's SAUNA (Swedish Unattended Noble gas Analyzer); France's SPALAX (Système de Prélèvements et d'Analyse en Ligne d'Air pour quantifier le Xénon); and Russia's ARIX (Analyzer of Xenon Radioisotopes), of which the last three are currently in use (Prelovskii et al., 2007; Reeder et al., 1998; Ringbom et al., 2003; Fontaine et al., 2004). The first three systems are equipped with  $\beta$ - $\gamma$  coincidence detection using plastic scintillators coupled to a NaI(Tl) crystal whereas the SPALAX system performs a direct HPGe  $\gamma$ /X-Ray detection.

A Quality Assurance program for Noble Gas systems (NG) of IMS Radionuclide network is under development by the Provisional Technical Secretariat (PTS) of the CTBTO. Spiking Noble Gas systems with known amount of  $^{133}\text{Xe}$  and/or  $^{131\text{m}}\text{Xe}$  and reanalysing spike samples at IMS Radionuclide laboratories equipped with NG capabilities is part of the program. Remoteness and very difficult location of some IMS stations is preventing use of these two isotopes due to their half-life, very short when compared to shipping times. Because it decays more slowly than the four CTBT relevant radioxenon isotopes and because it has an identical

physical behavior,  $^{127}\text{Xe}$  has been suggested as possible candidate for spiking at remote locations. CTBTO started in 2012 a feasibility study on use of  $^{127}\text{Xe}$ . At a preliminary step the study was constituted by a test intercomparison for IMS laboratories: a set of test samples was distributed at four designated radionuclide laboratories with noble gas measurement capability and a preliminary evaluation on the features related to  $^{127}\text{Xe}$  measurements was performed.

As a support laboratory of the CTBTO, we have been provided with two  $^{127}\text{Xe}$  standard. One sample was measured on a HPGe detector as part of the intercomparison exercise and the other one was tested on two prototype systems recently developed by the laboratory ((Le Petit et al., 2013); (Cagniant et al., 2013)). The purpose of this paper is to report on the results of these test measurements.

## 2. Radioxenon of interest and the $^{127}\text{Xe}$

As mentioned in the previous paragraph, noble gas stations dedicated to the measurement of radioxenons concentration in the atmosphere ( $^{131\text{m}}\text{Xe}$ ,  $^{133\text{m}}\text{Xe}$ ,  $^{133}\text{Xe}$  and  $^{135}\text{Xe}$ ) are installed in several locations of the globe, distributed as shown in Fig. 1. Each station needs accurate energy, efficiency, and air volumes calibrations to ensure their reliability in quantifying radioxenon CTBT relevant isotopes. The quantification of the radioxenon isotopes of interest is made by either  $\gamma$ -ray emission spectrometry using High Purity Germanium (HPGe) detectors in the SPALAX stations or by coincidence  $\beta/\gamma$  ray emission spectrometry using plastic scintillator and NaI(Tl) detectors in the SAUNA and ARIX stations. For the quality control of the measurement at these stations, energy and efficiency check of the spectrometers are required.

Currently, SPALAX stations are controlled using several gamma emission sources mixed in a low density matrix measurement cell, and the SAUNA and ARIX stations are controlled using  $^{137}\text{Cs}$  sources (Biegalski, 2013). The use of radioactive xenon gas

standard for calibration and QAQC of IMS noble gas stations would allow a more complete quality control, by testing the station process and the detection modules. Therefore, other calibration procedures than the actual ones are of interest and need to be checked.

The most intuitive way of calibrating IMS stations would be the direct use of standards of  $^{131\text{m}}\text{Xe}$ ,  $^{133\text{m}}\text{Xe}$ ,  $^{133}\text{Xe}$  and  $^{135}\text{Xe}$ ; still, this option presents some challenges. A first challenge is the production of such standards in large and pure quantities (see for example (Peräjärvi et al., 2013) or (Peräjärvi et al., 2010)); another challenge is the decay during transport of these standards (especially for  $^{135}\text{Xe}$  (0.38 d) and  $^{133\text{m}}\text{Xe}$  (2.19 d)), which can turn into a real issue when delivering standards to noble gas stations located at remote or logistically difficult locations.

$^{127}\text{Xe}$  radioisotope is expected to be a good candidate for the quality control of IMS noble gas station (see (Rodrigues et al., 2013)): it has a longer half-life than the four CTBT relevant radioxenon isotopes (36.4 days compared to 11.9 days for the longer lived  $^{131\text{m}}\text{Xe}$ ), it can be produced purely in large quantities and it is commercially available. Furthermore, there is a very low  $^{127}\text{Xe}$  background in the environment. The  $^{127}\text{Xe}$  decays first by Electron Capture (EC), and then by the emission of six different  $\gamma$  rays. The Fig. 2 shows the  $^{127}\text{Xe}$  decay scheme. In terms of electron radiations,  $^{127}\text{Xe}$  emits Auger electron (in competition with X-ray emissions) following the EC event (initiating its decay) and when

one of the five  $\gamma$  emissions is converted.  $^{127}\text{Xe}$   $\gamma$  rays and their corresponding K-Conversion Electron (K-CE) and L-Conversion Electron (L-CE) emissions are listed in the Table 2. These K-CE emissions are ranging from 24 keV to 341 keV. Because electron and photon emissions of  $^{131\text{m}}\text{Xe}$ ,  $^{133\text{m}}\text{Xe}$ ,  $^{133}\text{Xe}$  and  $^{135}\text{Xe}$  are in the same energy range as the ones from  $^{127}\text{Xe}$  (see Tables 1 and 2), it is expected that  $^{127}\text{Xe}$  can be used for the quality control of energy and efficiency calibration applied to both  $\beta/\gamma$  coincidence and direct  $\gamma$  measurement systems.

3. Experimental setups

A new spectrometer dedicated to the radioxenon measurements was recently developed in our laboratory, as detailed in (Le Petit et al., 2013). This spectrometer implements photon/electron coincidence measurement in order to improve SPALAX radioxenon detection capabilities. This coincidence detection is achieved using a customized well-type NaI(Tl) photon detector coupled to a specially designed 11 cm<sup>3</sup> gas cell equipped with two Passivated Implanted Planar Silicon (PIPS) detectors dedicated to the electron detection (hereafter called PIPSbox). Alternatively to this setup, the PIPSbox can also be used on the top of one (or two) HPGe detector; in the presented experiments a 5030 BEGe detector from

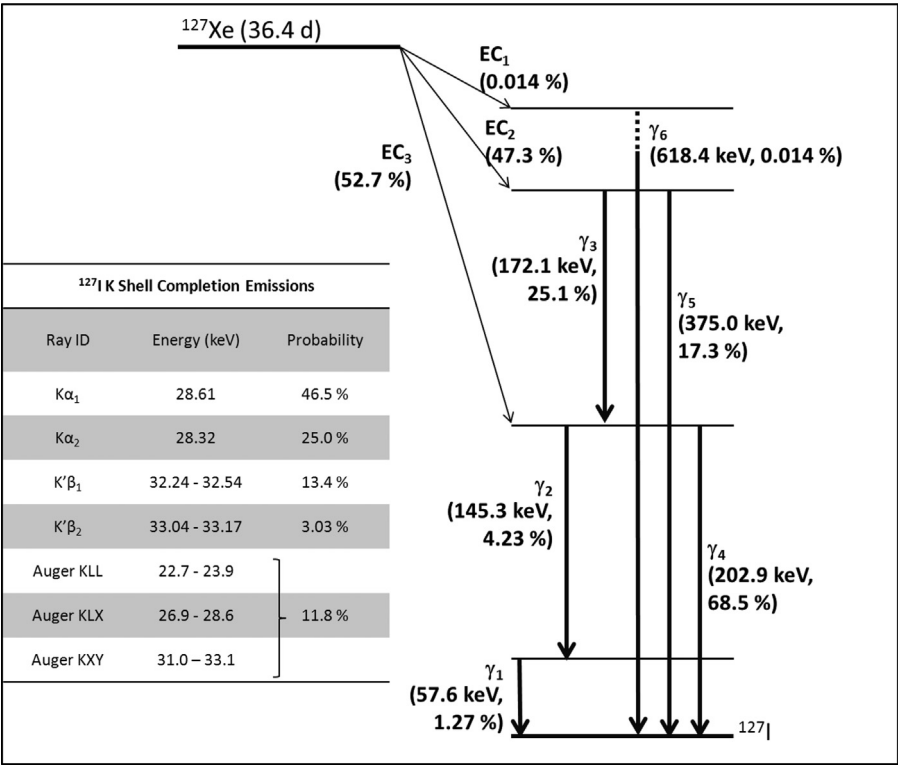


Fig. 2.  $^{127}\text{Xe}$  decay scheme (Chisté et al.). Conversion coefficient for  $^{127}\text{Xe}$   $\gamma$  can be found in Table 2.

Table 1  
Radioxenon of interest main decay modes (Chisté et al., 2014). Emission probabilities are shown in brackets. Data for  $^{135}\text{Xe}$  are taken from (Axelsson et al., 2012)

Isotopes	131mXe	133mXe	133Xe	135Xe
Half-life (days)	11.93	2.19	5.24	0.38
Major $\gamma$ -ray energy (keV)	163.9 (1.94%)	233.2 (10.3%)	81.0 (37.0%)	249.8 (90%)
K $\alpha$ X-ray energy (keV)	29.7 (44.2%) (Xe)	29.7 (45.7%) (Xe)	30.9 (38.5%) (Cs)	30.9 (4.1%) (Cs)
K $\beta$ X-ray energy (keV)	33.7 (8.31%) (Xe)	33.7 (8.6%) (Xe)	35.1 (7.3%) (Cs)	35.1 (0.9%) (Cs)
$\beta$ endpoint energy (keV)			346.4 (99.1%)	915 (96%)
K shell conversion electron energy (keV)	129.4 (61.4%)	198.7 (63.5%)	45.0 (52.9%)	213.8(5.6%)
L shell conversion electron energy (keV)	158.5–159.2 (28.6%)	227.8–228.4 (20.8%)	75.3–76.0 (7.92 %)	244.1 (0.82%)



**Table 2**

$\gamma$  emissions and corresponding K Conversion Electron emission of  $^{127}\text{Xe}$ . Emission probabilities are shown in brackets (Chisté et al., 2014).

Emission number	1 (6.00 %)	2 (6.22 %)	3 (29.74 %)	4 (76.3 %)	5 (17.6 %)	6 (0.0142 %)
$\gamma$ energy (keV)	57.6 (1.27%)	145.3 (4.23%)	172.1 (25.5%)	202.9 (68.5%)	375.0 (17.3%)	618.4 (0.0141%)
K-CE energy (keV)	24.4 (4.0%)	112.1 (1.5%)	139.0 (3.7%)	169.7 (6.6%)	341.8 (0.29%)	Not given
L-CE energy (keV)	52.4–53.1 (0.57%)	140.0–140.7 (0.38%)	166.9–167.6 (0.47%)	197.7–198.3 (0.97%)	369.8–370.4 (0.044%)	Not given

Canberra Semiconductors was used. This setup is detailed in (Cagniant et al., 2013); it has a better resolution than the NaI(Tl), especially in the low energy region (resolution of 0.6 keV compared to 8 keV at 30 keV). This allows the deconvolution between the two  $K\alpha$  X-ray multiplets corresponding to xenon (at 29.7 keV) and cesium (at 30.9 keV); the first ones will be emitted after a conversion electron from  $^{131\text{m}}\text{Xe}$  or  $^{133\text{m}}\text{Xe}$  while the second ones will be emitted after a conversion electron from  $^{133}\text{Xe}$  or  $^{135}\text{Xe}$  (see Table 1). The 5030 BEGe has a lower efficiency than the NaI(Tl) detector mainly because the gas volume is seen with a lower solid angle. It is placed into a lead shield made of a first layer of 5 cm low activity lead ( $< 3$  Bq/kg) and a second layer of 10 cm regular lead. The signals are recorded using a multichannel analyzer from FastCom Tec, using the same acquisition setup described in (Le Petit et al., 2013) and (Cagniant et al., 2013). Direct electron or photon spectrum, and coincidence electron (or photon) spectrum using 10  $\mu\text{s}$  coincidence window gated by the proper photon (or electron) energy window were acquired with the two HPGe/PIPSbox and NaI(Tl)/PIPSbox systems.

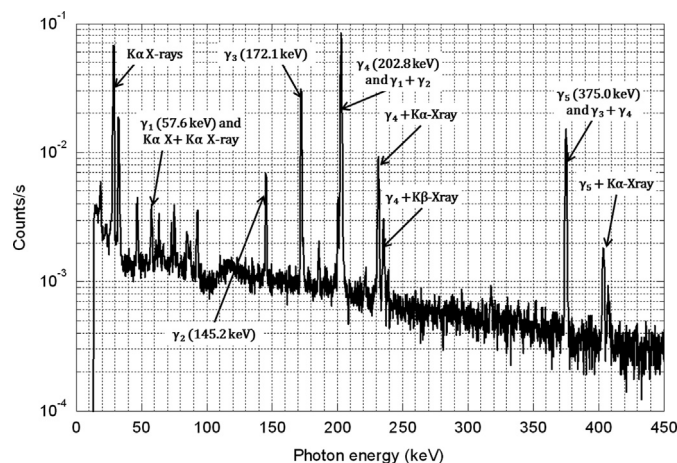
For the intercomparison exercise, the  $^{127}\text{Xe}$  standard was transferred into a gas cell. This gas cell has a cylinder shape, is made of pure aluminium, and has a volume of 25  $\text{cm}^3$ . The lower part of the cell is 0.7 mm thick in order to minimize X-ray absorption. The HPGe detector used is the 5030 BEGe presented in the previous paragraph. This gas cell/HPGe measurement configuration is strictly similar to the configuration currently implemented in the SPALAX noble gas station.

The above mentioned HPGe/PIPSbox setup is a high resolution (for both photon and electron) coincidence setup. The NaI(Tl)/PIPSbox setup is a high resolution in electron, low resolution in photon and with a close to  $4\pi$  solid angle of detection for photon setup. The comparison of the  $^{127}\text{Xe}$  measurements using these setups are therefore of valuable interest for the evaluation of its measurements in the frame of quality control dedicated to CTBTO noble gas stations.

#### 4. Direct $\gamma$ measurement and $K\alpha$ X-rays/K-CE measurement of $^{127}\text{Xe}$

A  $^{127}\text{Xe}$  standard gas archive was provided from Laboratoire National Henri Becquerel (LNHB) (Rodrigues et al., 2013). This archive was composed mainly of nitrogen and had an intrinsic activity of 50.8 (22) Bq of  $^{127}\text{Xe}$  at 12 h (U.T.C.) on the December 17th, 2012 (Rodrigues et al., 2013). 7.3% of this archive was transferred into a standardized gas cell (for  $^{127}\text{Xe}$  activity determination, as a part of the intercomparison exercise) and 4.2% of this archive was transferred into the PIPSbox.

The first acquisition was performed for 148390 s by placing the gas cell on the top of the HPGe detector. The measured spectrum is shown on Fig. 3. Using the calibration curve of this configuration and using the GESPECOR tool (Sima et al., 2001), it is possible to calculate precisely the summation coefficient for  $^{127}\text{Xe}$  photons emissions (see Table 3). Therefore, activity determination of the measurement is straightforward. This illustrates that a complete Quality Control of a SPALAX station is achievable with  $^{127}\text{Xe}$  standards.



**Fig. 3.** Direct photon spectrum of  $^{127}\text{Xe}$  acquired using a HPGe during 148392 s. Major  $^{127}\text{Xe}$  peaks are shown.

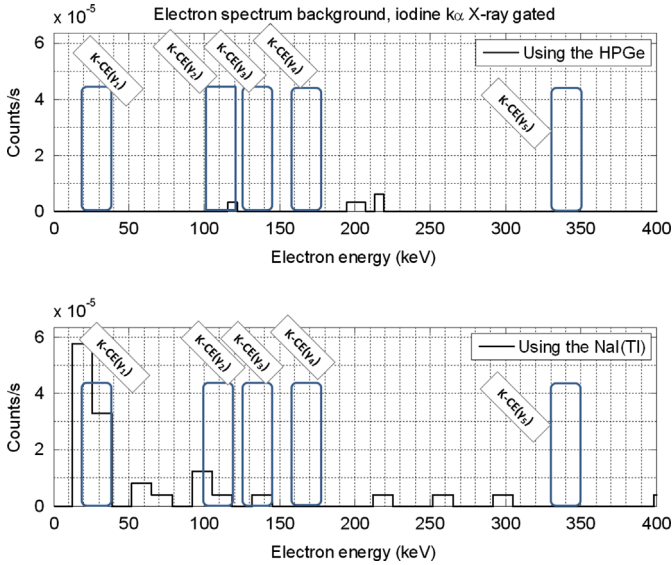
**Table 3**

Cascade summation correction coefficient calculated with GESPECOR (Sima et al., 2001) for the gas cell geometry in measurement on the 5030 BEGe. The Cascade summation correction factors are given with a 10%  $k=2$  extended uncertainty.

Photon emission	$K\alpha$ X-ray	$K\beta$ X-ray	$\gamma_1$	$\gamma_2$	$\gamma_3$	$\gamma_4$	$\gamma_5$
Energy (keV)	28.5	32.4	57.6	145.3	172.1	202.9	375.0
Cascade summation correction	1.3	1.3	1.5	1.4	1.4	1.2	0.8

Following this first acquisition, photon/electron coincidence measurements were performed using first the HPGe/PIPSbox (acquisition time: 338500 s) and then the NaI(Tl)/PIPSbox (acquisition time: 430900 s) configurations. The regions of interest for the detection of iodine  $K\alpha$  X-ray photons were defined as: 27.1–29.0 keV for the HPGe spectrum and 19.9–40.9 keV for the NaI(Tl) spectrum. The background measurements of the corresponding photon-gated electron spectra are shown on Fig. 4: they exhibit very low background count rates in the region of interest (ROI) of the K-CE emission lines of  $^{127}\text{Xe}$ . As the  $^{127}\text{Xe}$  standard was radio-pure (see (Rodrigues et al., 2013)), most of counts detected in the iodine  $K\alpha$  X-ray photon-gated electron spectra are directly linked to electrons coming from  $^{127}\text{Xe}$ .

The measured coincidence electron spectra and the calculated net peak area for K-CE emissions of  $^{127}\text{Xe}$  are shown in Fig. 5. Unfortunately, our setups are not able to measure the K-CE of  $\gamma_1$ , which is below the PIPS energy threshold (about 30 keV). The spectra shown in Fig. 5 are normalized to the NaI(Tl)/PIPSbox acquisition time. Despite the high detection efficiency of the well-type NaI(Tl) photon detector compared to the HPGe photon detector, it can be observed that the peak areas of K-CE( $\gamma_2$ ) and K-CE( $\gamma_3$ ) in the spectrum acquired with the NaI(Tl)/PIPSbox setup are weaker than in the HPGe/PIPSbox one. This is due to the high summation probability of  $\gamma_2$  and  $\gamma_3$ : since they both have a large summation probability, then the X-rays emitted following their conversion have also a large summation probability. As a result, the coincidental conversion electron will be recorded on a higher photon energy region of interest than the one corresponding to the

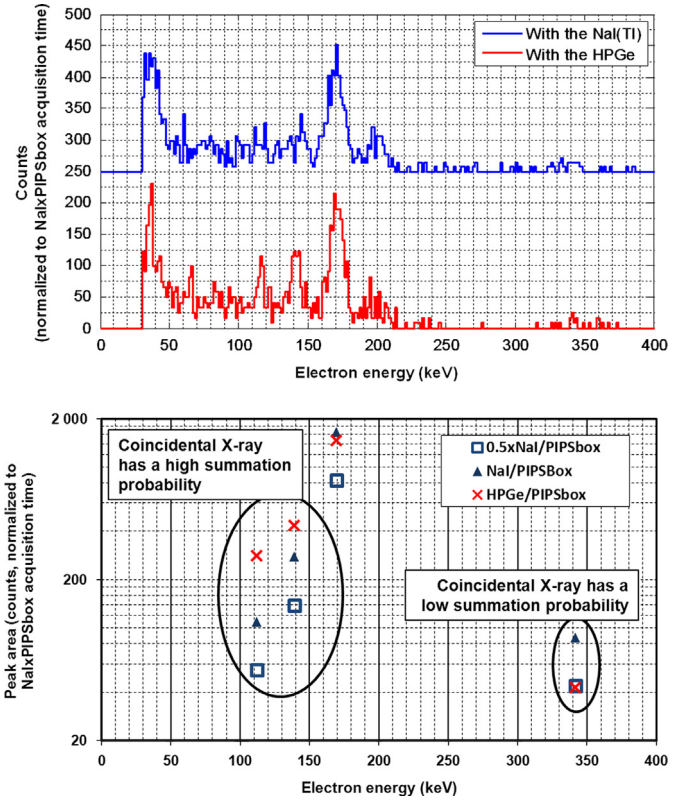


**Fig. 4.** Photon-gated electron background measurement spectrum: (top) HPGe/PIPSbox setup (3.9 d acquisition), and (bottom) NaI(Tl)/PIPSbox for (2.8 d acquisition). The photon Region of Interest (ROI) is from 27.1 to 29.0 keV for the HPGe/PIPSbox setup and from 19.9 to 40.9 keV for the NaI(Tl)/PIPSbox setup. These photon ROI correspond to the energy region at which iodine  $K\alpha$  X-rays are detected for the HPGe or the NaI(Tl). The NaI(Tl)-gated electron spectrum has a lower energy resolution because the spectrum was acquired with two times less channels than the HPGe-gated electron spectrum. The blue boxes are representing the energy ROI for  $^{127}\text{Xe}$  K-CE. This shows that, except for the K-CE( $\gamma_1$ ) at 24.4 keV (lower than energy threshold of the PIPSbox), the background counts in the region of interest of the electron from  $^{127}\text{Xe}$  is almost zero. (For interpretation of the references to color in this figure legend, the reader is referred to the web version of this article.)

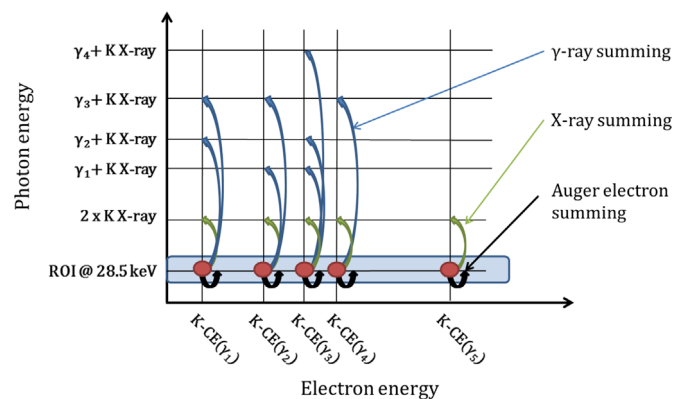
energy of iodine  $K\alpha$  X-rays (see Eq. (1), where  $n$  are  $\gamma$  emissions summing with the  $K\alpha$  X-ray). On the other hand, it can be observed that for the K-CE( $\gamma_5$ ), the peak area measured in the spectrum acquired with the NaI(Tl)/PIPSbox is almost two times larger than the one measured in the HPGe/PIPSbox one. This is due to the fact that  $\gamma_5$  has almost no summing possibilities. These effects are illustrated in Fig. 6, showing the summation possibilities that can be expected in a 2 dimensional coincidence spectrum. Each  $\gamma$  (blue arrow on the figure) or X-ray (green arrow on the figure) summation will contribute to count loss in the iodine  $K\alpha$  X-ray photon-gated electron spectra. The Auger electron summing effect is also not negligible, as the electron capture initiating the  $^{127}\text{Xe}$  decay process will generate an Auger electron with a probability of 11.8%. This figure shows that there is little probability for K-CE( $\gamma_5$ ) and high probability for K-CE( $\gamma_2$ ) and K-CE( $\gamma_3$ ) to be detected in coincidence with a photon of a higher energy than 28.5 keV (corresponding to the iodine  $K\alpha$  X-ray energy). These phenomena explain the difference in shape of the count rates between the HPGe/PIPSbox and NaI(Tl)/PIPSbox setups, as shown in Fig. 5.

$$E_{\text{tot}} = E_{K\alpha \text{ X-ray}} + \sum_n E_{\gamma_n} \quad (1)$$

The loss of count rate in the iodine  $K\alpha$  X-ray gated electron spectra of photon/electron coincidence measurement of  $^{127}\text{Xe}$  in both setups can also be illustrated by comparing the corresponding electron gated photon spectra with the measurement of a  $^{131\text{m}}\text{Xe}$  standard. Such a measurement was performed during the calibration process of the HPGe/PIPSbox setup detailed in (Cagniant et al., 2013). 15.3 Bq of  $^{131\text{m}}\text{Xe}$  were transferred in the PIPSbox, and measured for 57950 s. The electron gated photon spectrum for  $^{131\text{m}}\text{Xe}$  is shown on Fig. 7, and the electron gated spectrum for  $^{127}\text{Xe}$  is shown in Fig. 8 (with the NaI(Tl)/PIPSbox setup in the top part of the figure and the HPGe/PIPSbox setup in the bottom part of the figure). On the one hand,  $^{131\text{m}}\text{Xe}$  has no



**Fig. 5.** Top: Coincidence electron spectra gated by iodine  $K\alpha$  X-Rays. The electron spectrum gated by iodine  $K\alpha$  X-Rays detected with the NaI(Tl) is in blue, and electron spectrum gated by iodine  $K\alpha$  X-Rays detected with the HPGe is in red. The NaI(Tl) gated electron spectrum is voluntarily shifted to 250 counts baseline for a better visualization of the two spectra. The HPGe gated electron spectrum is normalized to the acquisition time of the NaI(Tl)/PIPSbox measurement. Bottom:  $^{127}\text{Xe}$  K-Conversion Electron peak areas calculated in the HPGe/PIPSbox (red cross) and NaI(Tl)/PIPSbox (blue triangles) spectra. Areas are normalized to the NaI(Tl)/PIPSbox acquisition time. As the solid angle of detection of the NaI(Tl) is about two times larger than the HPGe one, this figure shows also in light blue squares the K-CE peak areas calculated for the NaI(Tl)/PIPSbox acquisition divided by a factor of two. (For interpretation of the references to color in this figure legend, the reader is referred to the web version of this article.)

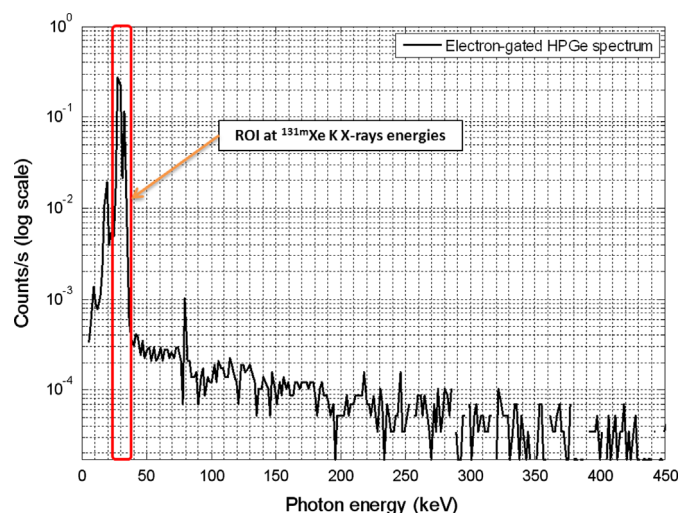


**Fig. 6.** Schematic of an electron (horizontal axis)/photon (vertical axis) coincidence spectrum illustrating the electron and photon summation possibilities for  $^{127}\text{Xe}$ . For simplification purpose, summations when only a  $\gamma$  is detected in coincidence with an electron or summations of two K-CE emitted in cascade are not shown on this schematic. Red circles are illustrating K-CE detected in coincidence with their associated iodine  $K\alpha$  X-ray. Blue arrows are showing the effects of a  $\gamma$ -ray/X-ray summing, green arrows are related X-ray/X-ray summing, and black arrows are illustrating an Auger electron/K-CE summing effect. These arrows show the complexity of performing a reliable efficiency calibration as numerous corrections are needed. (For interpretation of the references to color in this figure legend, the reader is referred to the web version of this article.)

major summation possibilities and all the coincidental photons are detected in the xenon  $K\alpha$  or  $K\beta$  X-ray energy region. On the other hand,  $^{127}\text{Xe}$  has several summation possibilities and major peaks of coincidental photons in both the HPGe and NaI(Tl) spectra are observed. This shows that for  $^{127}\text{Xe}$ , K-CE are mainly detected in coincidence with photons of energy higher than the iodine  $K\alpha$  X-ray. This implies complex correction calculations in order to obtain an efficiency calibration of a photon/electron coincidence detection system. In addition, in both NaI(Tl) and HPGe spectra a peak at 375 keV corresponding to  $\gamma_5$  detected in coincidence with an Auger electron emitted after the electron capture is observed. This shows that Auger electron summing can occur and need to be corrected, for proper calculation of an efficiency calibration.

## 5. Photon/K-conversion electron coincidences

From coincidence measurements, a complete two dimensional coincidence spectrum is achieved. In addition to the NaI(Tl)/PIPSbox

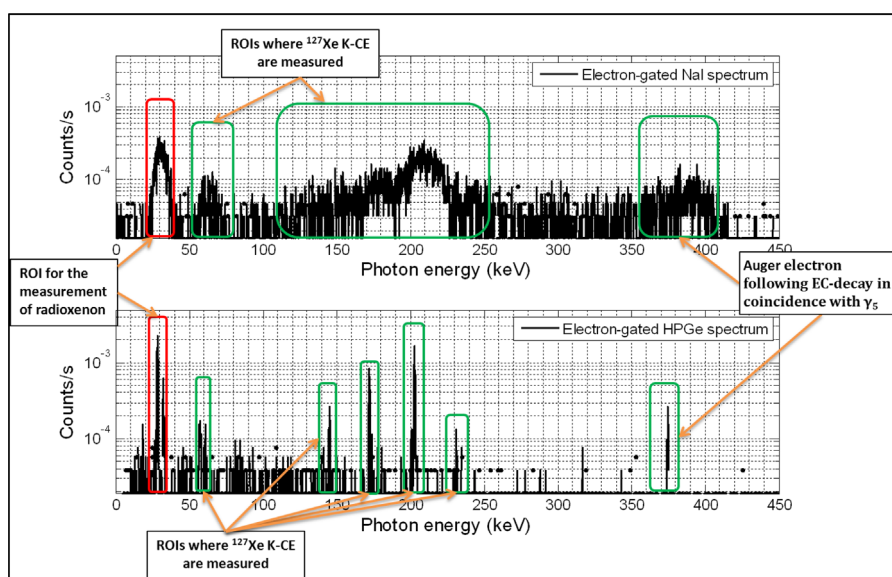


**Fig. 7.** Electron-gated photon spectrum of a 15.3 Bq  $^{131\text{m}}\text{Xe}$  standard acquired for 57950 s. One can see that most of the photons in coincidence with an electron are detected at the xenon K X-ray energies.

and HPGe/PIPSbox measurements, we were provided with a two dimensional coincidence spectrum of  $^{127}\text{Xe}$  measured with the SAUNA system by the Swedish Defense Research Agency (FOI) for 80830 s. For the HPGe/PIPSbox measurement the two dimensional spectrum is shown in Fig. 9 (normalized to the NaI(Tl)/PIPSbox acquisition time, 338550 s). In Fig. 10 is shown the two dimensional coincidence spectrum corresponding to the NaI(Tl)/PIPSbox measurement. Finally, the SAUNA two dimensional spectrum is shown in Fig. 11. For these three spectra, detailed descriptions are given. For clearer descriptions of the spectra, the followed simplifications are done: i.  $^{127}\text{Xe}$  K X-rays have a low (but not negligible) probability to interact with the PIPSbox. As the PIPSbox energy resolution is too low to distinguish K X-rays from K Auger electrons, all events that could correspond to a K X-ray or a K Auger electron signal in the PIPSbox will be attributed exclusively to K Auger electrons. ii. K-CE and K Auger summation events are observed in the PIPSbox signal. Actually, these events could also be K-CE and K X-ray (depositing energy in the PIPSbox) summation events or also L-CE events. For simplification, as the PIPSbox energy resolution is too low to distinguish these events, they will all be considered as K-CE and K Auger summation event.

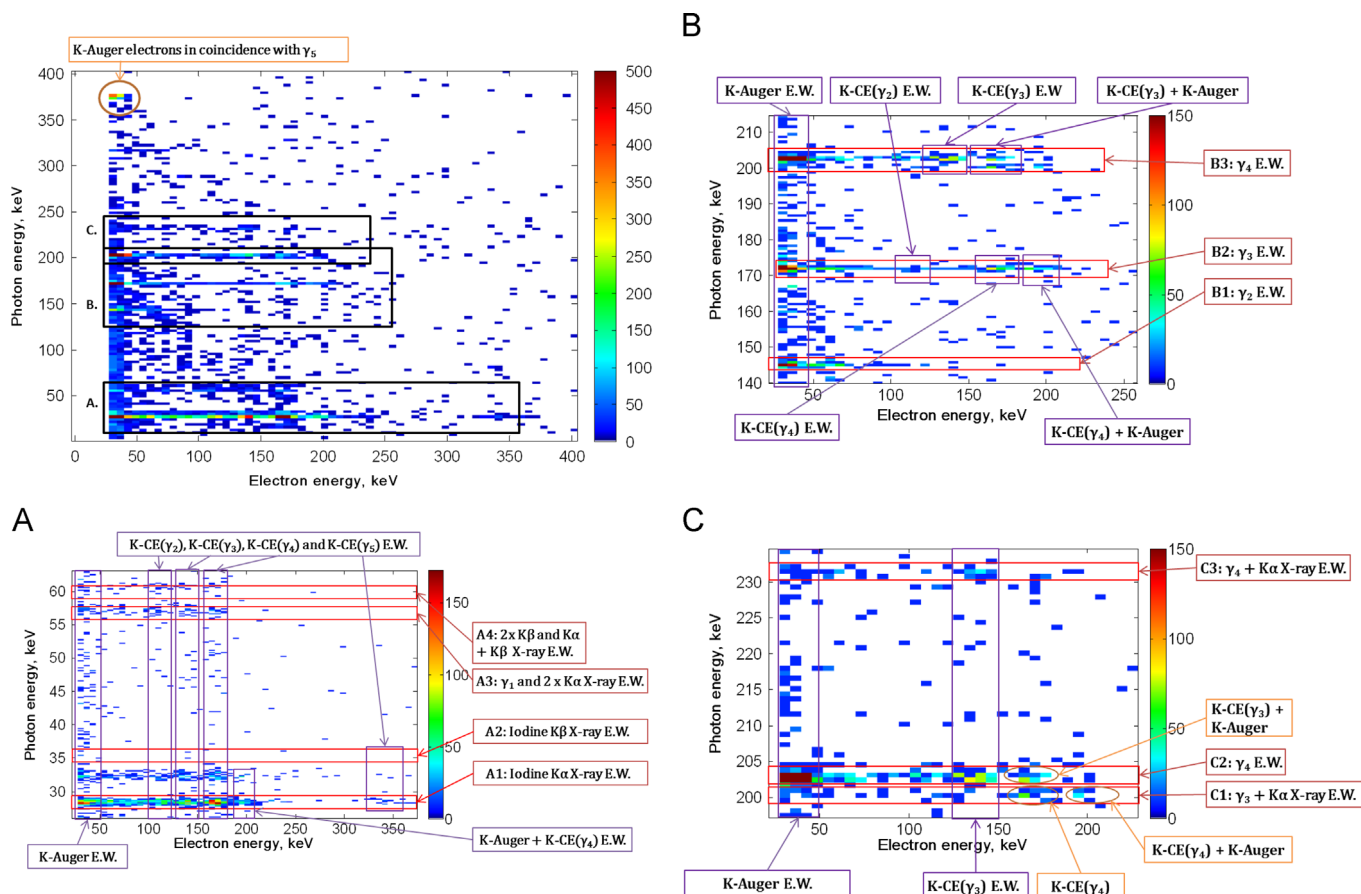
The high photon resolution of the HPGe/PIPSbox setup allows the distinction of several complicated regions of interest, which are detailed in Fig. 9, section A, B and C. The section A is a zoom in a region where electrons are in coincidence with four possible photon combination with: i.  $K\alpha$  X-rays, ii.  $K\beta$  X-rays, iii.  $\gamma_1$  or two  $K\alpha$  X-rays, iv.  $K\alpha + K\beta$  or two  $K\beta$  X-rays. The section B is a zoom in a region where electrons are in coincidence with  $\gamma_2$ ,  $\gamma_3$  and  $\gamma_4$ . The section C is a zoom in a region where electrons are in coincidence with  $\gamma_4$ ,  $\gamma_4 + K\alpha$  X-rays and  $\gamma_3 + K\alpha$  X-rays (this photon energy window is not considered in section B).

In Fig. 9 section A, the expected photon/electron coincidental event corresponding to the conversion of a  $^{127}\text{Xe}$   $\gamma$  ray can be observed around the iodine  $K\alpha$  X-ray photon energy (energy window noted A1 in the figure); as explained in the part IV of this paper, these event are under-represented in this energy window owing to photons summation effects. Furthermore, the  $K\alpha$  X-rays/K-CE( $\gamma_3$ ) peak is weaker than the expected one due to additional electron summation effects, leading to a  $K\alpha$  X-rays/K-CE( $\gamma_3$ ) + K-Auger peak. It can be noticed that in A2 the same coincidental events described in A1 (but now related to  $K\beta$  and



**Fig. 8.** Electron-gated photon spectra of  $^{127}\text{Xe}$ . Top: using the NaI(Tl)/PIPSbox setup, bottom: using the HPGe/PIPSbox setup. The red-surrounded area corresponds to the ROI for the detection of iodine  $K\alpha$  X-rays in coincidence with K-CE. The green surrounded areas correspond to sum of photons detected in coincidence with an electron from  $^{127}\text{Xe}$ . (For interpretation of the references to color in this figure legend, the reader is referred to the web version of this article.)





**Fig. 9.** The  $^{127}\text{Xe}$  two dimensional spectrum measurement with the HPGe/PIPSbox setup. Three sections (A., B., and C., delimited by black rectangles) of this spectrum are detailed in the corresponding subfigures. The colorbars are adapted to dynamics of each figure or subfigures. In each subfigure, energy windows (noted E.W.) are defined: in red are the photon energy windows (numbered A1, A2, A3 and A4 in section A, B1, B2 and B3 in section B and C1, C2 and C3 in section C), and in magenta are the electron energy windows. In orange are shown particular ROIs. (For interpretation of the references to color in this figure legend, the reader is referred to the web version of this article.)

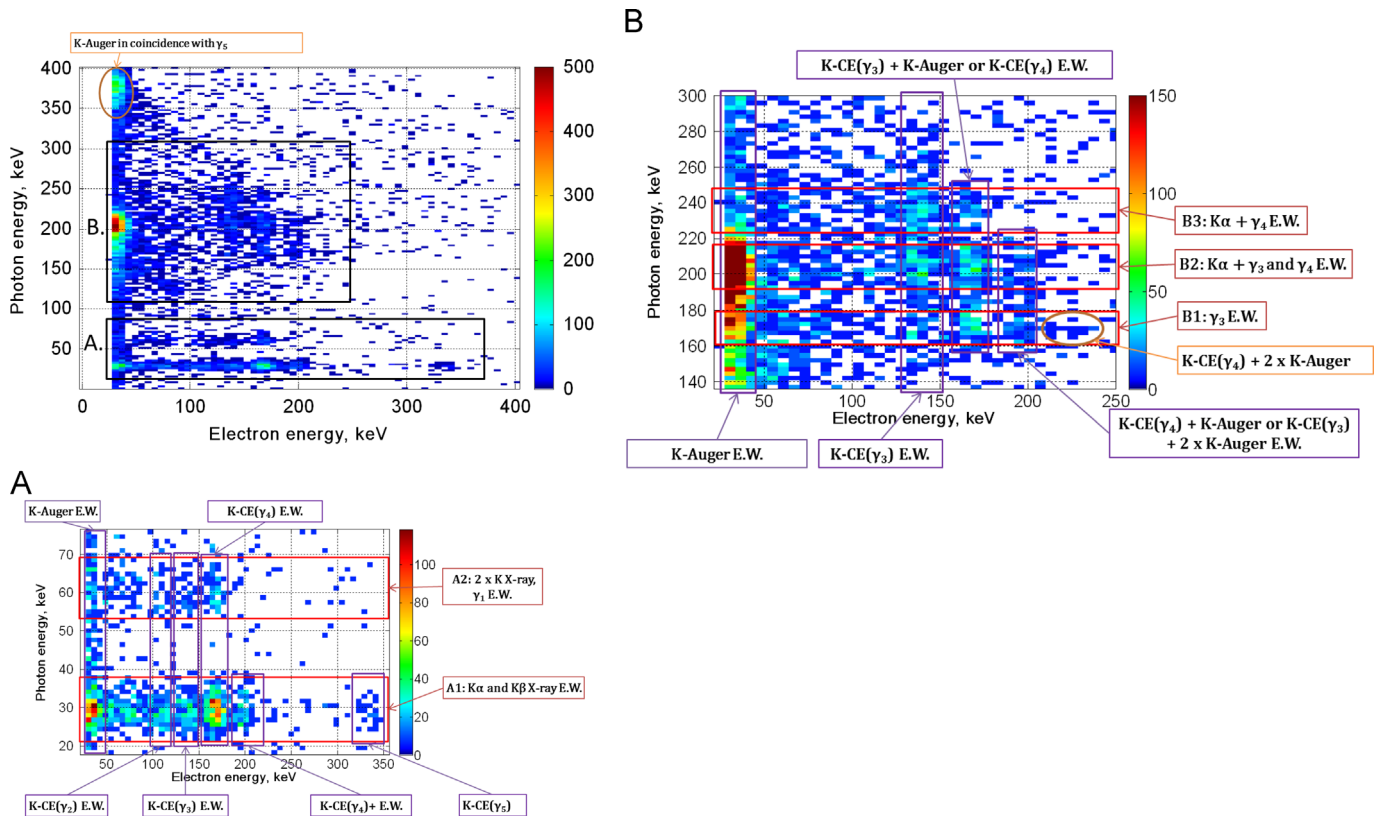
not to  $K\alpha$  X-rays) are observed but with a lower probability. In the A3 energy window (corresponding to electrons in coincidence with  $\gamma_1$  or two  $K\alpha$  X-rays) only a few K-Auger electrons are detected since: i. the probability of a double  $K\alpha$  X-rays and K-Auger cascade is very low (possible only if two  $\gamma$  rays are converted in a row), and ii.  $\gamma_1$  has a low probability of emission ( $\gamma_1$  is highly converted). Furthermore, no K-Auger electron in summation with  $K\text{-CE}(\gamma_4)$  events are observed in the A3 and A4 energy windows, due to the very low probability of a cascade including two K X-rays and one K-Auger electron.

In Fig. 9 section B are shown the coincidences between electrons and photons from the following  $\gamma$  emissions:  $\gamma_2$  (in B1 energy window),  $\gamma_3$  (in B2 energy window) and  $\gamma_4$  (in B3 energy window).  $\gamma_2$  has a 4.3% emission probability (much lower than those of  $\gamma_3$  and  $\gamma_4$ ) explaining that most of the electrons detected in the B1 energy window are K-Auger electrons (emitted in cascade with  $\gamma_2$  at a probability of 11.8%, being the sum of the K-Auger emission). The electrons detected in the B2 energy window are K-Auger electrons,  $K\text{-CE}(\gamma_2)$ ,  $K\text{-CE}(\gamma_4)$  and  $K\text{-CE}(\gamma_4) + K\text{-Auger}$  electrons.  $\gamma_4$  and  $\gamma_3$  are in cascade, therefore  $\gamma_3/K\text{-CE}(\gamma_4)$  events are observed and K-Auger electrons are emitted as well: i. following the electron capture (initiating  $^{127}\text{Xe}$  decay) or ii. after the conversion of  $\gamma_4$ . Therefore  $\gamma_3/K\text{-CE}(\gamma_4) + K\text{-Auger}$  events match as well the decay scheme of  $^{127}\text{Xe}$ . As expected, no  $K\text{-CE}(\gamma_3)$  are present in this energy window, since  $K\text{-CE}(\gamma_3)$  cannot be in cascade with  $\gamma_3$ . Finally, the most intense peak of the summated events is observed in the B3 energy window (as shown in the spectrum at the bottom of the Fig. 8). These summated events are mainly

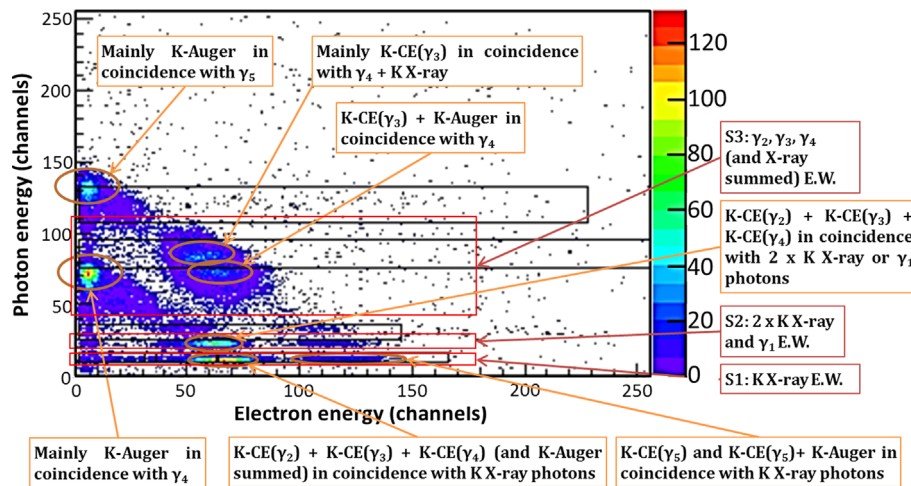
$\gamma_4/K\text{-Auger}$  electron coincidences, but other events are also observed (see explanation related to the section C hereafter).

In Fig. 9 section C are shown the coincidences between electrons and the following photon events:  $\gamma_3 + K\alpha$  X-ray (in C1 energy window),  $\gamma_4$  (in C2 energy window) and  $\gamma_4 + K\alpha$  X-ray (in C3 energy window). C1 and C2 are two subdivisions of the B3 energy window from section B. The high photon resolution of the HPGe allows the distinction of these two energy windows, separating clearly the  $\gamma_3 + K\alpha$  X-ray/ $K\text{-CE}(\gamma_4)$  events and the  $\gamma_4/K\text{-CE}(\gamma_3) + K\text{-Auger}$  electron events. Compared to C2, in C1 very few K-Auger electrons are detected alone (since  $\gamma_3 + K\alpha$  X-ray/ $K\text{-CE}(\gamma_4)$  events have a higher probability). In C2 are shown the  $\gamma_4/K\text{-Auger}$  electron (which is the most detected event in the whole spectrum),  $\gamma_4/K\text{-CE}(\gamma_2)$ ,  $\gamma_4/K\text{-CE}(\gamma_3)$ , and  $\gamma_4/K\text{-CE}(\gamma_3) + K\text{-Auger}$  electron events. Few  $\gamma_4 + K\alpha$  X-ray/ $K\text{-Auger}$  events are detected in C3 (for the same reason that in C1). Furthermore,  $\gamma_4 + K\alpha$  X-ray/ $K\text{-CE}(\gamma_3)$  and  $\gamma_4 + K\alpha$  X-ray/ $K\text{-CE}(\gamma_3) + K\text{-Auger}$  events are also detected.

Regarding the acquisition of  $^{127}\text{Xe}$  with the NaI(Tl)/PIPSbox setup, the resulting two dimensional spectrum is shown in Fig. 10. In this spectrum two sections are of interest: section A corresponds to electrons in coincidence with i. iodine K X-rays, and ii.  $\gamma_1$ , or a sum of two X-rays; section B corresponds to electrons in coincidence with i.  $\gamma_3$ , ii.  $\gamma_3 + K$  X-ray or  $\gamma_4$  and iii.  $\gamma_4 + K$  X-ray. The photon energy resolution of this setup does not allow the distinction between  $K\alpha$  and  $K\beta$  X-rays, or between  $\gamma_3 + K$  X-ray and  $\gamma_4$ .



**Fig. 10.** The  $^{127}\text{Xe}$  two dimensional spectrum measurement with the NaI(Tl)/PIPSbox setup. Two sections (A., and B., delimited by black rectangles) of this spectrum are detailed in the corresponding subfigures. The colorbars are adapted to dynamics of each figure or subfigures. In each subfigure, energy windows (noted E.W.) are defined: in red are the photon energy windows (numbered A1 and A2 in section A and B1, B2 and B3 in section B), and in magenta are the electron energy windows. In orange are shown particular region of interest. (For interpretation of the references to color in this figure legend, the reader is referred to the web version of this article.)



**Fig. 11.** Two dimensional coincidence spectrum from a  $^{127}\text{Xe}$  standard acquired with the SAUNA system (courtesy of FOI). Red squares are showing three energy windows (E.W.) of interest, detailed in the text. The orange circles are showing the main region of interest of this spectrum. The black boxes are the ROIs used for the measurement of  $^{131\text{m}}\text{Xe}$ ,  $^{133\text{m}}\text{Xe}$ ,  $^{133}\text{Xe}$  and  $^{135}\text{Xe}$ ; the counts in these boxes are of no interest in this study. (For interpretation of the references to color in this figure legend, the reader is referred to the web version of this article.)

In Fig. 10 section A, the A1 energy window corresponds to the photon region of interest defined for the NaI(Tl) in paragraph IV (see the blue spectrum on the top of Fig. 5). In the A2 energy window (corresponding to electrons in coincidence with  $\gamma_1$  or with two K X-rays) we can observe very few K-Auger electrons (comparing to the A1 energy window) and no K-CE( $\gamma_5$ ), for the same reasons that were given for the HPGe/PIPSbox spectrum. Concerning K-Auger electrons, the  $\gamma_1$ /K-Auger events have a low probability and  $2 \times \text{K X-ray}/\text{K-Auger}$  events are not

possible. Regarding K-CE( $\gamma_5$ ),  $2 \times \text{K X-ray}/\text{K-CE}(\gamma_5)$  events have a very low probability and  $\gamma_1/\text{K-CE}(\gamma_5)$  events are not allowed by the decay scheme.

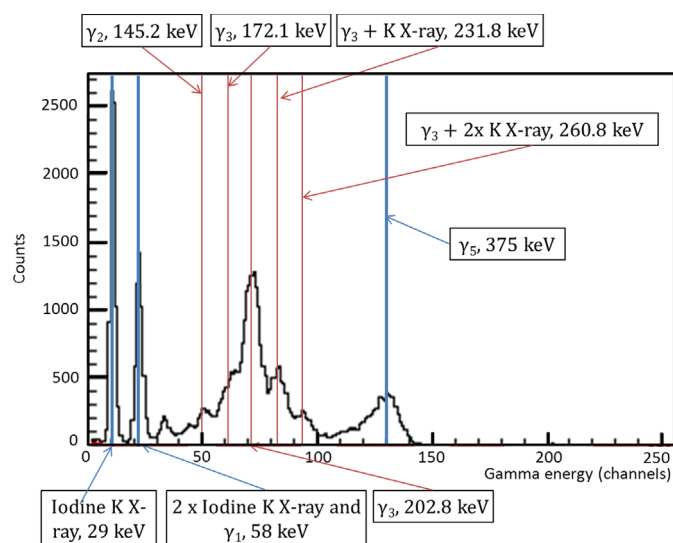
In Fig. 10 section B, corresponding to electrons in coincidence with  $\gamma$  photons and  $\gamma$  photon+K X-rays, three photon energy windows are of interest. The first one, B1, shows events corresponding to  $\gamma_3/\text{K-CE}(\gamma_4)$ ,  $\gamma_3/\text{K-CE}(\gamma_4)+\text{K-Auger}$ , and very few  $\gamma_3/\text{K-CE}(\gamma_4) + 2 \times \text{K-Auger}$  coincidences (allowed only when all emitted particles are detected). Still in B1, one can observe few



events with an electron energy ranging from 130 to 150 keV. This cannot be linked to  $\gamma_3/\text{K-CE}(\gamma_3)$  events but corresponds to other events ( $\gamma_3/\text{K-CE}(\gamma_4)$ ,  $\gamma_3/\text{K-CE}(\gamma_4)+\text{K-Auger}$  or  $\gamma_3/\text{K-CE}(\gamma_4)+2\times\text{K-Auger}$ ) when the electrons have deposited only a part of their energies. In the photon energy window B2, electrons are either in coincidence with  $\gamma_3$  photons summed with K X-ray or with  $\gamma_4$ . Events in this energy window are  $\gamma_3+\text{K X-ray}/\text{K-CE}(\gamma_4)$ ,  $\gamma_3+\text{K X-ray}/\text{K-CE}(\gamma_4)+\text{K-Auger}$ ,  $\gamma_4/\text{K-Auger}$  (the most intense area of the spectrum; some  $\gamma_3+\text{K X-ray}/\text{K-Auger}$  events are also present, but they are negligible),  $\gamma_4/\text{K-CE}(\gamma_3)$  and  $\gamma_4/\text{K-CE}(\gamma_3)+\text{K-Auger}$ ,  $\gamma_4/\text{K-CE}(\gamma_3)+2\times\text{K-Auger}$  coincidences. Finally, in B3 photon energy window are shown  $\gamma_4+\text{K X-ray}/\text{K-Auger}$  (only few of them for the same reason as for the HPGe/PIPSbox setup),  $\gamma_4+\text{K X-ray}/\text{K-CE}(\gamma_3)$ ,  $\gamma_4+\text{K X-ray}/\text{K-CE}(\gamma_3)+\text{K-Auger}$  coincidental events.

Because of the higher efficiency and lower resolution of the NaI(Tl)/PIPSbox setup compared to the HPGe/PIPSbox setup, the section B of Fig. 10 is much more complex than the section B and C of Fig. 9. On one hand, owing to the higher efficiency of the NaI(Tl)/PIPSbox setup we have coincidence events involving more particles compared to the previous setup (HPGe/PIPSbox). On the other hand, owing to the lower photon resolution of the NaI(Tl)/PIPSbox setup, these events are not resolved from other multiparticle events (for instance, in section B:  $\gamma_3+\text{K X-ray}/\text{K-CE}(\gamma_4)+\text{K-Auger}$  events are superimposed with  $\gamma_4/\text{K-CE}(\gamma_3)+2\times\text{K-Auger}$  events). As a consequence, the more complex the two dimensional spectrum the more difficult it will be to correct the setup efficiency calibration.

This is clearly illustrated from the analysis of a  $^{127}\text{Xe}$  spectrum measured with a SAUNA setup (which has a better photon and electron efficiency but a worse energy resolution) as reported in Fig. 11. Because the SAUNA spectrum is scaled in channels, a photon energy calibration was performed in order to be more confident in the photon energy windows used to interpret the two dimensional spectrum. On Fig. 12 is shown the electron gated photon spectrum of the SAUNA measurement. In blue are the lines that were used for the energy calibration of the photon channels, and in red are some major photon/electron coincident events. In Fig. 11, three main photon energy windows have been defined: S1 corresponding to electrons in coincidence with iodine K X-ray, S2 corresponding to electrons in coincidence with  $\gamma_1$  or a sum of two



**Fig. 12.** Electron gated photon spectrum of  $^{127}\text{Xe}$  measured with a SAUNA system. The blue lines are the ones used for the energy calibration of this spectrum (with the iodine K X-ray, the sum of two iodine K X-ray or  $\gamma_1$ , and  $\gamma_5$  peaks). The red lines are peaks determined the energy calibration. This spectrum has a lower resolution than the spectra presented in Fig. 8. (For interpretation of the references to color in this figure legend, the reader is referred to the web version of this article.)

K X-ray, and S3 corresponding to electrons in coincidence with  $\gamma_2$ ,  $\gamma_2+\text{K X-ray}$ ,  $\gamma_3$ ,  $\gamma_3+\text{K X-ray}$ ,  $\gamma_4$  and  $\gamma_4+\text{K X-ray}$ . It can be noticed that with this setup  $\gamma_2/\text{K-CE}$  or  $\gamma_2+\text{K X-ray}/\text{K-CE}$  events are detected at very low level (and are not shown in Figs. 9 or 10), so we do not consider them in this study. S1 and S2 energy windows exhibit almost the same two main coincidental event areas. In S2 we observed only  $2\times\text{K X-rays}/\text{K-CE}$  events whereas in S1 we observed K X-ray/K-CE and K X-ray/K-CE+K-Auger events, involving K-CE of  $\gamma_2$ ,  $\gamma_3$  and  $\gamma_4$  in the first area, and K-CE( $\gamma_5$ ) in the second one. This explains why in S1 the two main areas have a higher statistics and a larger electron energy range than the two areas in S2.

In the energy window S3 (Fig. 11), three main electron/photon event regions of interest are observed (see orange circle in S3). A complete interpretation of each region of interest is apparently complex. But we can see that the S3 region corresponds in fact to the already studied section B of Fig. 10 and sections B and C of Fig. 9 (corresponding to the setups which exhibit better resolution). So, one is able to give the most probable events dominating each one of these three regions of interest. The first main region of interest in S3 (labeled 1 in the figure) corresponds mainly to  $\gamma_4/\text{K-Auger}$  events (most intense peak), but also some additional events are associated:  $\gamma_3+\text{K X-ray}/\text{K-CE}(\gamma_1)$ ,  $\gamma_3/\text{K-Auger}$  and  $\gamma_3+\text{K X-ray}/\text{K-Auger}$  events. The second main region of interest in S3 (labeled 2 in the figure) is dominated by  $\gamma_4/\text{K-CE}(\gamma_3)$  events, associated to  $\gamma_3+\text{K X-ray}/\text{K-CE}(\gamma_4)$ ,  $\gamma_3+\text{K X-ray}/\text{K-CE}(\gamma_4)+\text{K-Auger}$ ,  $\gamma_4/\text{K-CE}(\gamma_3)+\text{K-Auger}$  and  $\gamma_4/\text{K-CE}(\gamma_3)+2\times\text{K-Auger}$  events. Finally, in the third main region in S3 (labeled 3), the major contribution has to be attributed to  $\gamma_4+\text{K X-ray}/\text{K-CE}(\gamma_3)$  events, associated with  $\gamma_4+\text{K X-ray}/\text{K-CE}(\gamma_3)+\text{K-Auger}$ ,  $\gamma_3+2\times\text{K X-ray}/\text{K-CE}(\gamma_4)$ ,  $\gamma_4+2\times\text{K X-ray}/\text{K-CE}(\gamma_3)$  less probable events.

This last spectrum analysis shows that whatever the region of interest considered, complex correction factors have to be applied in order to obtain the corresponding photon/electron efficiency calibration. Using standards of  $^{127}\text{Xe}$  for efficiency calibration of  $\beta/\gamma$  setups is therefore not recommended.

## 6. Conclusion

The quality control of IMS certified noble gas stations of the CTBT network is of primary concern. Because of its longer half-life (compared to the half-life of the four CTBT relevant Xenon isotopes), its suitable particle emissions and its ease of production,  $^{127}\text{Xe}$  is an interesting radioxenon isotope that might be used for this scope. As part of a feasibility study organized by the CTBTO in early 2013, two  $^{127}\text{Xe}$  standards were provided to the CTBT certified laboratory FRL08. One standard was measured as part of the proposed test laboratory intercomparison, using the noble gas measurement capability based on high resolution  $\gamma$  spectrometry; CEA/DAM used the opportunity of the second standard to perform additional test measurements with the two recently developed photon/electron coincidence setups. In this paper, direct photon and photon/electron coincidence spectra resulting from  $^{127}\text{Xe}$  measurements are presented in detail. The measurement of  $^{127}\text{Xe}$  by high resolution  $\gamma$  spectrometry is straightforward. Things become much more complicated when photon/electron coincidence techniques are used.

The particularity (in terms of electron and photon resolution and efficiency) of the two setups (NaI(Tl)/PIPSbox and HPGe/PIPSbox) recently developed in our laboratory allowed us detailed analysis of the two dimensional spectra resulting from  $^{127}\text{Xe}$  measurement. A great number of events detected by these setups are in fact multiparticle-involved coincidental events (K X-ray,  $\gamma$ , K-CE L-CE or K-Auger electrons emitted within the coincidence time window of our setups). This leads to complicated two

dimensional spectra, where region of interest are related to several multiparticle events. In addition to our measurements, we also used the knowledge acquired during the analysis of these two spectra to detail the complexity of a two dimensional spectrum resulting from the measurement of  $^{127}\text{Xe}$  by a SAUNA setup.

As a conclusion, the measurement of  $^{127}\text{Xe}$  by high resolution  $\gamma$  spectrometry is straightforward, this giving full confidence in the feasibility and opportunity of using  $^{127}\text{Xe}$  within the frame of a QA/QC program for Noble Gas systems using this measurement technique. Therefore this isotope could serve for a complete QA/QC process of SPALAX stations, including efficiency calibration checks. The results of tests performed during 2013 on SPALAX systems demonstrated the full applicability of  $^{127}\text{Xe}$  based QA/QC program for NG stations of the CTBT network using SPALAX systems.

Things are different when measuring  $^{127}\text{Xe}$  with photon/electron coincidence spectrometry: in this case the measurements result in complex spectra involving unresolved multiparticle coincidental events, and summing correction factors are too complex to be precisely computed. A QA/QC program for NG stations of the IMS network based on  $^{127}\text{Xe}$  seems potentially achievable for Noble Gas systems using coincidence techniques, but presents some strong limitations due to the high uncertainties in efficiency calibration checks. The use of  $^{127}\text{Xe}$  can be considered for many checks foreseen within the IMS Station Certification process and the QA/QC program for Noble Gas  $\beta/\gamma$  systems in use at IMS stations (such as energy calibration, cross-contamination evaluation and memory effect evaluation) but is not recommended when efficiency calibration checks are required.

## Disclaimer

“The views expressed herein are those of the authors and do not necessarily reflect the views of the CTBTO Preparatory Commission. The Commission itself takes no responsibility for the content of this Technical Paper/abstract”.

## Acknowledgments

The authors are very thankful to B. Nadalut from CTBTO and P. Cassette from the LNHB for providing us a  $^{127}\text{Xe}$  standard. This

work was partially financially supported by the French Ministry of Defense, DGA, Office for Advanced Research and Innovation.

## References

- Axelsson, A., Martensson, L., Mortzell, A., Ringbom, A., July 2012. Improvement of the SAUNA Noble Gas System Calibration Procedures. ISSN-1650-1942. Editor : Stockholm : Totalförsvarets forskningsinstitut (FOI).
- Biegalski, S.R., 2013. AutoCal: a method for automatic energy calibration of beta-gamma systems based on a  $^{137}\text{Cs}$  spectrum. *J. Radioanal. Nucl. Chem.* vol. 296, 465–469.
- CTBTO, 1996. The Comprehensive Nuclear Test Ban Treaty. C.T.B.T.O, Vienna, Austria
- Cagniant, A., Le Petit, G., Gross, P., Douysset, G., Richard-Bressand, H., Fontaine, J.-P., 2013. Improvements of low-level radionuclide detection sensitivity by state-of-the art coincidence setup. *Appl. Radiat. Isot.* <http://dx.doi.org/10.1016/j.apradiso.2013.11.078>
- Chisté, V., Bé, M.M., Galan, M., Radionuclide database. [http://www.nucleide.org/DDEP\\_WG/DDEPdata.htm](http://www.nucleide.org/DDEP_WG/DDEPdata.htm). Last on access: March 11th, 2014.
- Fontaine, J.-P., Pointurier, F., Blanchard, X., Taffary, T., 2004. Atmospheric xenon radioactive isotope monitoring. *J. Environ. Radioact.* vol. 72, 129.
- Le Petit, G., Cagniant, A., Morelle, M., Gross, P., Achim, P., Douysset, G., Taffary, T., Moulin, C., 2013. Innovative concept for a major breakthrough in atmospheric radioactive xenon detection for nuclear explosion monitoring. *J. Radioanal. Nucl. Chem.* , <http://dx.doi.org/10.1007/s10967-013-2525-8>
- Peräjärvi, K., Eronen, T., Elomaa, V.-V., Hakala, J., Jokinen, A., Kettunen, H., Kolhinen, V., Laitinen, M., Moore, I.D., Penttilä, H., Rissanen, J., Saastamoinen, A., Toivonen, H., Turunen, J., Äystö, J., 2010. Ultra-high resolution mass separator—Application to detection of nuclear weapons tests. *Appl. Radiat. Isot.* vol. 68, 450–453.
- Peräjärvi, K., Eronen, T., Cagniant, A., Gorelov, D., Hakala, J., Jokinen, A., Kankainen, A., Kettunen, H., Kohonen, V.S., Laitinen, M., Moore, I.D., Penttilä, H., Rissanen, J., Saastamoinen, A., Toivonen, H., Turunen, J., Äystö, J., 2013. Production of pure samples of  $^{131\text{m}}\text{Xe}$  and  $^{135}\text{Xe}$ . *Appl. Radiat. Isot.*
- Prelovskii, V.V., Kazarinov, N.M., Donets, A.Y., Popov, V.Y., Popov, I.Y., Skirda, N.V., 2007. The ARIX-03F mobile semiautomatic facility for measuring low concentrations of radioactive xenon isotopes in air and subsoil gas. *Instrum. Exp. Tech.* vol. 50, 393–397.
- Reeder, P.L., Bowyer, T.W., Perkins, R.W., 1998. Beta-gamma counting system for Xe fission products. *J. Radioanal. Nucl. Chem.* vol. 235, 89–94.
- Ringbom, A., Larson, T., Axelsson, A., Elmgren, K., Johansson, C., 2003. SAUNA – a system for automatic sampling, processing, and analysis of radioactive xenon. *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res.* vol. A, 542–553.
- Rodrigues, M., Lépy, M.-C., Cassette, P., Mougeot, X., Bé, M.M., 2013. Standardization of Xe-127 and measurement of photon emission intensities. *Appl. Radiat. Isot.* , <http://dx.doi.org/10.1016/j.apradiso.2013.11.066>
- Saey, P.R.J., 2007. Ultra-low-level measurements of argon, krypton, and radon for treaty verification purposes. *ESARDA Bulletin* vol. 36, 42–56.
- Sima, O., Arnold, D., Gespecor, D.C., 2001. A Versatile tool in gamma-ray spectrometry. *J. Radioanal. Nucl. Chem.* vol. 248, 365–370.



# An introduction to $\gamma^3$ a new versatile ultralow background gamma spectrometer. Background description and analysis

A. Cagniant\*, G. Douysset\*, J.-P. Fontaine, P. Gross, G. Le Petit

CEA, DAM, DIF, F-91297 Arpajon, France

## HIGHLIGHTS

- A new ultra-low background gamma spectrometer was installed at surface level.
- Its shielding design and cosmic veto configuration are presented.
- Its background characteristics are detailed and compared with existing systems.
- Radon-free gas injection effects in the background are studied and presented.

## ARTICLE INFO

### Article history:

Received 20 May 2014

Received in revised form

3 September 2014

Accepted 27 January 2015

Available online 2 February 2015

### Keywords:

Low-level gamma spectrometry  
High purity germanium detectors  
Background analysis  
CTBTO

## ABSTRACT

The  $\gamma^3$  setup has been designed as a versatile, high sensitivity spectrometry platform. State-of-the art techniques have been implemented to reduce its background to minimum level even though the system is installed at ground level. The shield design and background performance of the setup are presented. The spectrometer is composed of three identical HPGe detectors for high detection efficiency or coincidence measurement and can accommodate several sample geometries. Its shield includes three layers of increasing purity lead, a cosmic veto, an inner borated polyethylene layer, and a radon-free gas injection system. The spectrometer normalized background count rate is 4.4 counts per minute  $\text{kg}_{\text{Ge}}^{-1}$  (in the 40–2500 keV energy range). Its background characteristics, cosmic veto efficiency, and radon-free gas injection performances are discussed.

© 2015 Elsevier Ltd. All rights reserved.

## 1. Introduction

In the field of theoretical physics and environmental monitoring applications, measurement of rare events is of high importance. Two reviews devoted to the design and interest of such ultralow-background measurements for theoretical physics were conducted in the past 20 years (see Heusser, 1995 and Formaggio and Martoff, 2004). More recently Povinec et al. (2008) summarized existing low-background spectrometers and techniques for the measurement of environmental radioactivity traces. Both applications require the use of ultra-low background spectrometers. In order to increase trace detection capabilities at ground level (located at a depth corresponding to 2 m of water equivalent (m.w.e.)), a high-efficiency ultralow-background spectrometer was developed and installed; a picture of this spectrometer is shown in Fig. 1. It was named  $\gamma^3$  and is used in various applications e.g.:

measurements of fission product traces in environmental samples in the frame of the Comprehensive nuclear Test Ban Treaty Organization (see CTBTO, 1996; Le Petit et al., 2014; Cagniant et al., 2013); detection of naturally occurring radioactive materials in environmental sample; measurements of radionuclides at trace level for physics experiments. The  $\gamma^3$  spectrometer can deal with several sample geometries: gas cells, atmospheric filters and small/large volume containers for solid or liquid matrices.

To obtain an optimal background reduction of the spectrometer, the following techniques discussed in the previously quoted reviews were implemented: (i) a cosmic veto was installed, it is commonly used to reduce the effect of secondary cosmic particles in the HPGe detectors (Heusser, 1993; Pointurier et al., 1996; Schroettner et al., 2004; Povinec et al., 2004; Ferreux et al., 2009; Thomas et al., 2013; Heusser et al., 2013; Burnett and Davies, 2014; Khan et al., 2014), (ii) a borated polyethylene layer was inserted in the shielding, it proved to be efficient to reduce the  $\gamma$ -lines resulting from neutron activation (Heusser, 1995; Schwaiger et al., 2002; Heusser et al., 2013), (iii) the injection of radon-free gas proved to be efficient to reduce radon progenies  $\gamma$ -lines (Heusser, 1995).

\* Corresponding authors.

E-mail address: [antoine.cagniant@cea.fr](mailto:antoine.cagniant@cea.fr) (A. Cagniant).



Fig. 1. A general view of the  $\gamma^3$  spectrometer.

In order to deal with different geometries while increasing the detection efficiency, several experimental setups have used two or more HPGe detectors (Konki et al., 2012; Wieslander et al.,

2009; Tomlin et al., 2008). A previous study (Jutier and Douysset, 2012) showed that for some standard geometries (20–500 cm<sup>3</sup> containers or aerosol filters), the use of two to three detectors is of

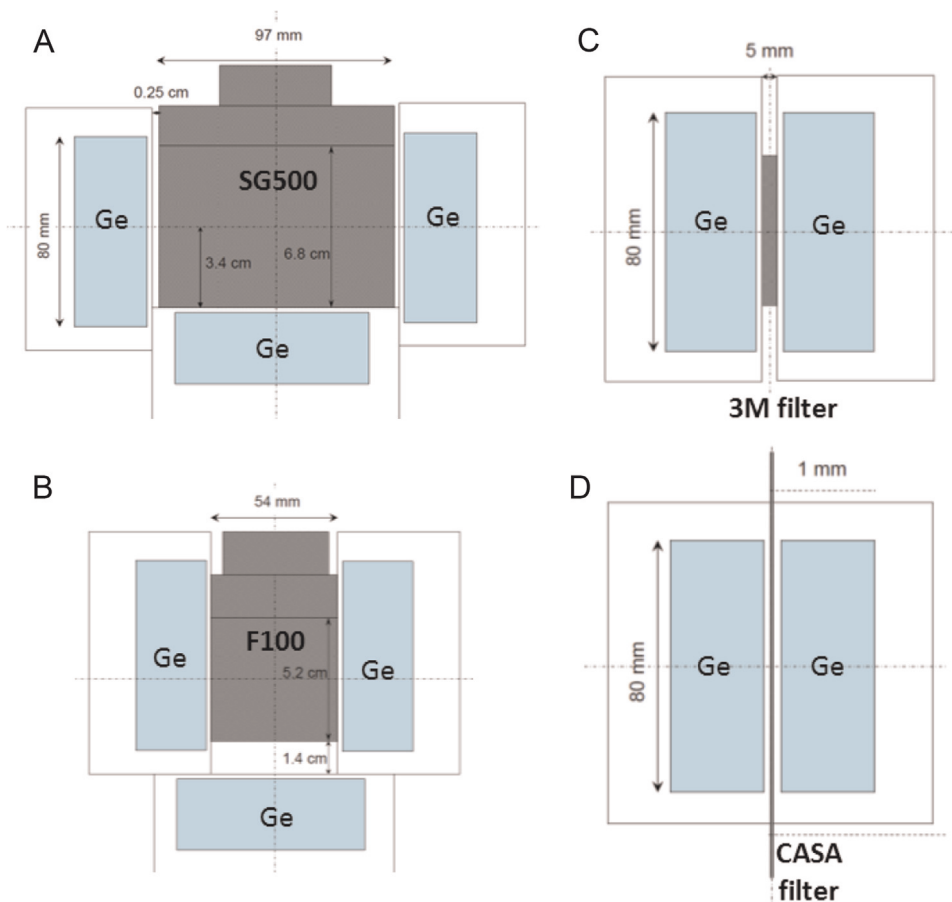


Fig. 2. Four examples of sample geometries that can be measured in the  $\gamma^3$  spectrometer. High efficiency measurements are performed when summing the spectra from three (A and B schematics) or two (C and D schematics) HPGe detectors. The SG500 and F100 are standard containers for volume samples (500 mL and 100 mL respectively). The CASA and 3 M are aerosol filters. Each lateral detector can be moved horizontally of 9 cm. The bottom detector can be translated horizontally and vertically by 15 cm and 6 cm respectively.



interest. Therefore, three identical HPGe detectors are placed in the  $\gamma^3$  spectrometer and can accommodate several sample geometries, as shown in Fig. 2.

## 2. Experimental configuration

### 2.1. HPGe characteristics and acquisition system

The  $\gamma^3$  setup is operated using a digital acquisition system. It is composed of 14 bits/75 MHz DGF Pixie-4<sup>TM</sup> multichannel cards from XIA LLC operated by a PXI crate from National Instruments. The spectra are acquired using the Pixie routine for the Igor<sup>TM</sup> software from WaveMetrics. The first channel of the DGF Pixie-4<sup>TM</sup> card is dedicated to the cosmic veto; the last three channels are dedicated to the HPGe detectors. The Pixie-4<sup>TM</sup> module implements trapezoidal filtering of the signals, with optimized slow filter parameters: 11  $\mu$ s rise time and 1.2  $\mu$ s flat top for the HPGe and 4  $\mu$ s rise time and 0.4  $\mu$ s flat top for the cosmic veto. The Pixie routine allows for coincidence or anticoincidence measurement modes between each channel by selecting the corresponding hit pattern in the software. Data can be recorded in a classic multichannel analyzer (MCA) mode where counts are stored in its corresponding histogram or in a list-mode where counts with corresponding time of detection, measuring detector identification number and energy are listed in a file.

Data analysis can be performed in several ways. For high efficiency measurements, the three detectors will contribute to the same spectrum in additive mode. For measurement of multi- $\gamma$  ray emitter radionuclides, coincidence measurements (of up to three simultaneously emitted photons) can be obtained from a list-mode file. For thin samples, containing no cascading  $\gamma$ -ray emitter radionuclides, a partial anti-Compton mode can also be implemented.

The three HPGe crystals were carefully selected. Crystals were preferably chosen with a large area (approximately 5000 mm<sup>2</sup>) and a small thickness (approximately 30 mm) as: (i) about 90% of fission products of interest can be characterized by photons of less than 1 MeV (50% by photons below 500 keV), (ii) samples may be large. More than selecting the HPGe according to individual measurement constraints (energy resolution, peak shape, and relative efficiency), discrepancies of each detector's measurement characteristics were also constrained. Finally, the selected HPGe detectors are Broad Energy BEGe5030P (liquid nitrogen cooled) from the Canberra Company. They are designed for low-background measurements (high purity copper crystal mount cap and high purity aluminum endcap) and in order to efficiently measure photons down to 20 keV they are equipped with 600  $\mu$ m carbon fiber entrance windows. Their typical energy resolutions and detection efficiencies are given in Table 1. The two horizontal detectors are named Athos and Aramis, and the vertical one is named Porthos.

**Table 1**

Full-Width at Half Maximum (FWHM) of the three selected HPGe detectors for the  $\gamma^3$  spectrometer. The relative efficiency is given for <sup>60</sup>Co according to ANSI/Std 325-1996.

Detectors	FWHM (in keV)			Relative efficiency
	<sup>241</sup> Am (59.5 keV)	<sup>137</sup> Cs (661.7 keV)	<sup>60</sup> Co (1332.5 keV)	
Athos	0.55	1.15	1.59	52.1%
Porthos	0.55	1.18	1.63	50.4%
Aramis	0.49	1.16	1.60	50.5%

### 2.2. Passive and active shielding

In order to minimize the background counts of the spectrometer, a particular attention was paid to the design of its shield. It is made of six different layers, as shown in Fig. 3: three layers of lead, one layer of borated polyethylene, one layer of steel and one layer devoted to the cosmic veto. The shield weights 6 t. The different layers composing the shielding are detailed in the following paragraphs.

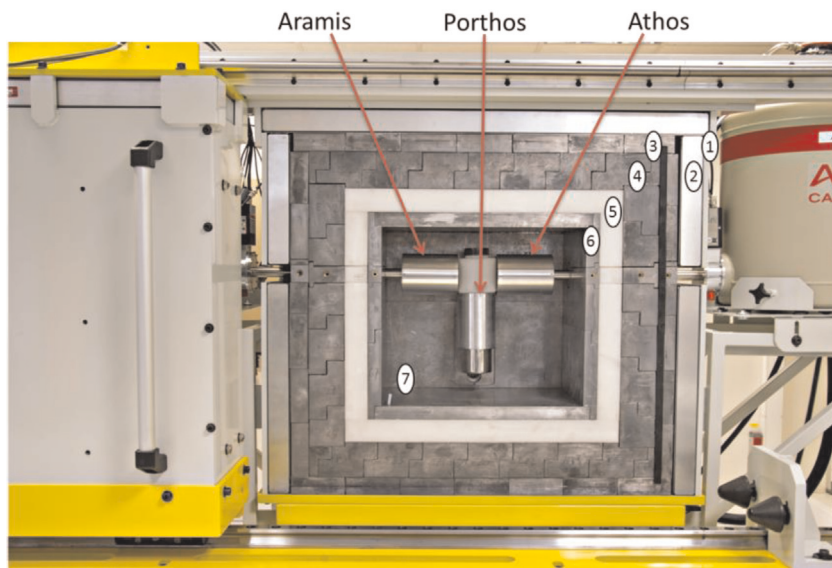
Three layers of lead were chosen, for a total of 15 cm lead thickness. These three layers are differentiated by their intrinsic <sup>210</sup>Pb/<sup>210</sup>Bi radioactivity. The radio-purity of the lead to its main contaminant, <sup>210</sup>Pb, is improved from one layer to another. From the outside to the inside, the layers are: first 4 cm of low activity lead (LA, with an intrinsic radioactivity lower than 30 Bq kg<sup>-1</sup> of <sup>210</sup>Pb), secondly 8 cm of ultralow activity lead (ULA, with an intrinsic radioactivity lower than 3 Bq kg<sup>-1</sup> of <sup>210</sup>Pb), and finally 3 cm of archeological lead (U2LA, with an intrinsic radioactivity lower than 0.3 Bq kg<sup>-1</sup>).

In order to minimize the secondary neutron flux reaching the HPGe detectors a 2% (in mass) borated Polyethylene (PE+B) 5 cm layer is inserted between the ULA and the U2LA layers. By doing so, the neutrons (mainly produced by the interaction of cosmic muons with the lead) are first thermalized (by the PE) and then captured (by the boron) before their interaction with the crystal. The U2LA layer is the closest one to the sample chamber as the PE+B layer may have an intrinsic residual radioactivity and the neutron capture reaction <sup>10</sup>B(n, $\alpha$ )<sup>7</sup>Li generates 478 keV prompt photons. The 3 cm U2LA lead layer absorbs more than 95% of these 478 keV photons.

Also, there are two holes going through the shielding for the injection of radon-free gas in the measurement chamber. This creates a small overpressure in the leak tight measurement chamber that expels out the radon. Injection tests were performed and are detailed thereafter.

A cosmic veto is used in order to reduce the background counts in the HPGe detectors resulting from the interaction of cosmic muons with the spectrometer. The technique implements an anticoincidence measurement between the HPGe detectors and scintillation plates surrounding the lead shield, i.e. when the scintillation plates detect an incoming cosmic muon the data acquisition in the HPGe detectors is vetoed. Six scintillations plates fitted with an embedded ETL-9900B photomultiplier are surrounding the shielding: two are placed side to side on the top of it, and four are surrounding it laterally (covering up to 89% of the top and lateral shielding surface). These plates were provided by Scionix, each plate is made of a 5 cm EJ-200 low-background plastic scintillator protected with a thin 1.5 mm layer of aluminum. This insures better robustness of the cosmic veto setup. The six photomultiplier signals are first tuned to insure that the six channels have the same energy range and then summed, providing one cosmic veto signal which directly inputs the Pixie-4<sup>TM</sup> module. The cosmic veto configuration requires the adjustment of three parameters: the cosmic threshold in the scintillation plates spectrum, the delay time of this channel compared to the HPGe channels and the anti-coincidence time window width:

- The cosmic threshold is defined as the channel that separates the high energy part of the scintillation plates spectrum (where energy deposition is directly caused by cosmic muons) and the low energy part of the scintillation plates spectrum (where energy deposition is mainly due to environmental photons). The anticoincidence between the cosmic veto signal and the HPGe detectors signals is implemented each time a count is detected at a higher level than the threshold channel. A lower cosmic threshold will increase the effectiveness of the veto, but



**Fig. 3.**  $\gamma^3$  shielding design. The steel structure #1, scintillation plates #2, lead layers (#3:  $30 \text{ Bq}^{(210\text{Pb})}\text{kg}^{-1}$ , #4:  $3 \text{ Bq}^{(210\text{Pb})}\text{kg}^{-1}$  and #6:  $0.3 \text{ Bq}^{(210\text{Pb})}\text{kg}^{-1}$ ), borated polyethylene layer #5, radon-free gas injection #7 are shown. In the center of the picture one can see Athos, Porthos and Aramis HPGe detectors in configuration for SG500 sample measurements.

will also increase the dead-time of the system, especially if the veto is triggered by environmental photons. Fig. 4 shows the background spectrum of the scintillation plates.

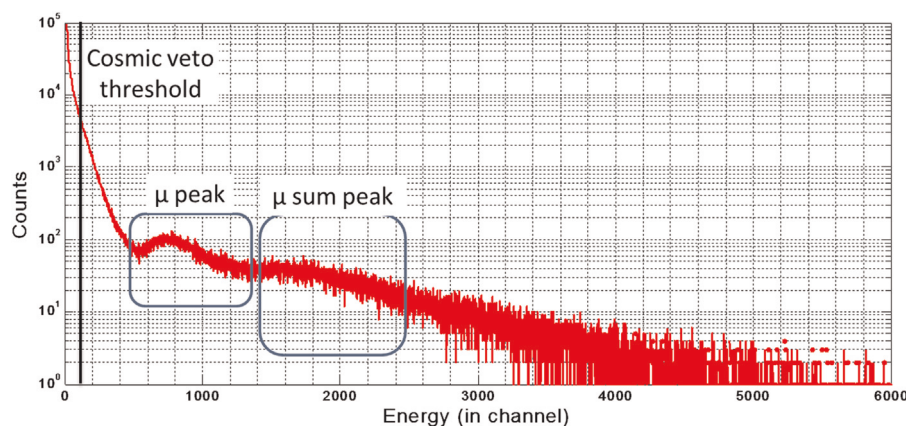
- The delay time of the cosmic veto channel is roughly equal to the time difference between the HPGe detectors energy rise time (channel 1, 2 and 3) and the cosmic veto energy rise time (channel 0), in the present case, it was set to  $8.2 \mu\text{s}$ .
- The anti-coincidence time window is tuned after a list-mode background measurement of the four channels (cosmic and three HPGe). From the corresponding list-mode file, the coincidence time spectrum between an incoming event from the cosmic veto channel and an incoming event from any other channel is obtained. This time spectrum is shown in Fig. 5. From this, the anticoincidence time window width was set to  $2 \mu\text{s}$ .

The counting losses due to veto threshold and anticoincidence window were checked to be negligible ( $< 1\%$ ) during the measurement of a  $10 \text{ kBq}$  sample [energy range:  $59\text{--}1332 \text{ keV}$ ]. This result is coherent with the estimated value of  $0.3\%$  (cosmic veto count rate is  $1400 \text{ counts per second}$ , or cps).

### 3. Background characteristics and analysis

#### 3.1. The $\gamma^3$ background

A  $\gamma^3$  background measurement of 14.1 days was performed. During this background acquisition the cosmic veto was on and nitrogen gas boiling off from a single HPGe Dewar was continuously injected in the measurement chamber. In order to evaluate the cosmic veto efficiency, the Porthos detector background spectrum from this measurement is compared in Fig. 6 with a Porthos background measurement without using the cosmic veto, nitrogen injection was performed during both measurements. A background reduction factor of 11 (i.e. 91%) is obtained in the  $20\text{--}2500 \text{ keV}$  range when using the cosmic veto. This background reduction factor is higher than other ones presented for surface instruments in Schroettner et al. (2004), Povinec et al. (2004) or Burnett and Davies (2012). Successive background measurements using each single one the scintillating plates were performed for 3600 s. The corresponding results in terms of background reduction are summarized in Table 2. The difference in background reduction between the back and the



**Fig. 4.** Cosmic veto background acquired during 14.1 days. Muon and muon sum peaks are shown. The muon sum peak corresponds to secondary cosmic muons depositing energy in two scintillation plates. The cosmic veto threshold is set at channel 100. The energy calibration is approximately  $6 \text{ keV/channel}$ .

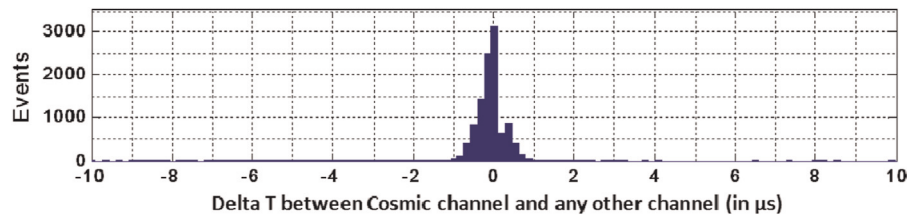


Fig. 5. Time repartition between hits in the cosmic veto and hits in one of the three HPGe detectors (when the cosmic veto line is delayed by 8.2  $\mu$ s).

front scintillating plate is due to the position of the Porthos detector inside the measurement chamber. Because a single muon can hit one or two plates at the successively, the sum of the contribution of each scintillating plate for reducing the integral background count rate is higher than the contribution of the veto when all plates are used.

It is commonly accepted that the deeper the laboratory is, the lower the integral count rate should be (Heusser, 1995). Therefore, the comparison of the  $\gamma^3$  background normalized integral count rate with surface, shallow-depth and deep underground laboratories is of interest. Such comparison is shown in Fig. 7. The calculated normalized integral count rate of the  $\gamma^3$  spectrometer is 4.4 cpm  $\text{kg}_{\text{Ge}}^{-1}$  (in the 40–2500 keV energy range). The  $\gamma^3$  background is among the lowest ones published by surface laboratories (i.e. located above 10 m.w.e. depth).

Background characteristics of  $\gamma^3$  are compared with those of two running systems dedicated to CTBTO (CTBTO, 1996) measurements: FRL08\_001, a 250  $\text{cm}^3$  n-type coaxial HPGe Canberra/Eurysis detector, 59% relative efficiency; and FRL08\_004, a 186  $\text{cm}^3$  p-type coaxial HPGe detector, 53% relative efficiency, Profile-FX type from the Ortec Company (the relative efficiencies are given for  $^{60}\text{Co}$  according to ANSI/Std 325-1996). All three systems are located in the same laboratory. Such comparison is given in Table 3 (where a comparison of the integral background count rates is given) and in Table 4 (where a comparison of background characteristics of each HPGe is given). From Table 3, it is shown that the normalized integral background count rate of  $\gamma^3$  (calculated as the sum of counts in an energy range, normalized by the acquisition time and the mass of the Ge crystal) is lower than those of the two other detectors in each same energy range. Differences between Porthos and the two other detectors are observed. This is due to vertical vs horizontal orientation of the crystals. The vertically oriented detector (Porthos) offers a larger surface to the cosmic muon flux, resulting into an approximately 15% increase of the integral count rate.

Table 2

Porthos integrated background count rates and background reduction ratio when using only a single scintillating plate at a time. The background measurements were performed for 3600 s, the energy range is 20–2500 keV.

Scintillating plate	Porthos integrated background count rate over 20–2500 keV (in counts $\text{min}^{-1}$ )	Background reduction ratio
None	$49.6 \pm 1.0$	–
Top	$24.9 \pm 0.8$	$49.8 \pm 1.6\%$
Top door	$38.7 \pm 1.1$	$22.0 \pm 0.4\%$
Front	$35.9 \pm 1.0$	$27.7 \pm 0.8\%$
Back	$40.9 \pm 1.1$	$17.4 \pm 0.5\%$
Left side	$42.1 \pm 1.1$	$15.1 \pm 0.6\%$
Right side	$42.9 \pm 1.2$	$13.4 \pm 0.4\%$
All plates <sup>a</sup>	$4.24 \pm 0.01$	$91.5 \pm 2.7\%$

<sup>a</sup> This particular measurement was performed during 14.1 days.

From Table 4, the following facts are of interest:

- Traces of  $^{40}\text{K}$  and  $^{60}\text{Co}$  isotopes are observed in the  $\gamma^3$  background spectrum at a higher level than in those of the two other spectrometers. As there are three HPGe detectors enclosed in the same shield, a single HPGe will have three times more material potentially contaminated in its vicinity than a single-detector configuration spectrometer. Candidates to explain  $^{40}\text{K}$   $\gamma$ -line are either the carbon fiber windows (Povinec et al., 2008) and/or the PE+B layer of the shielding (Heusser et al., 2013).  $^{60}\text{Co}$  is a known contaminant of iron (Heusser, 1995). The structure of the spectrometer is made of regular steel, and a large quantity of iron is needed to support the 6 t of lead composing its shielding, the cryostat tubes are also made of stainless steel. Therefore,  $^{60}\text{Co}$   $\gamma$  lines may come from these two components of the spectrometer.

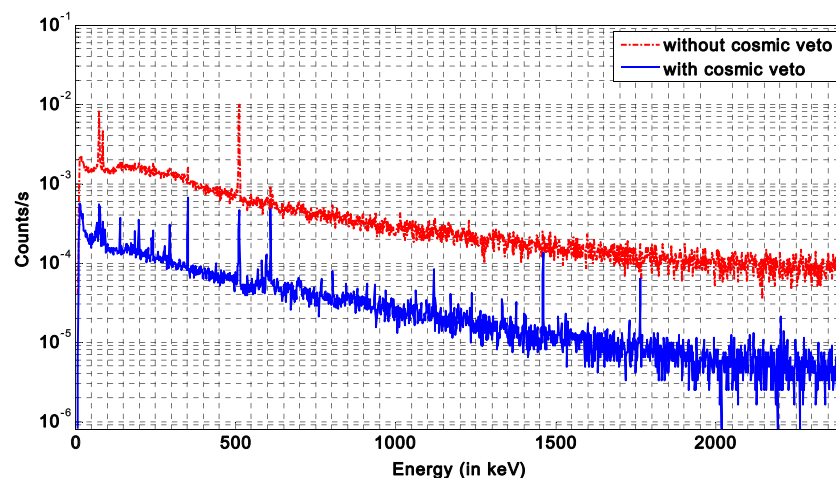
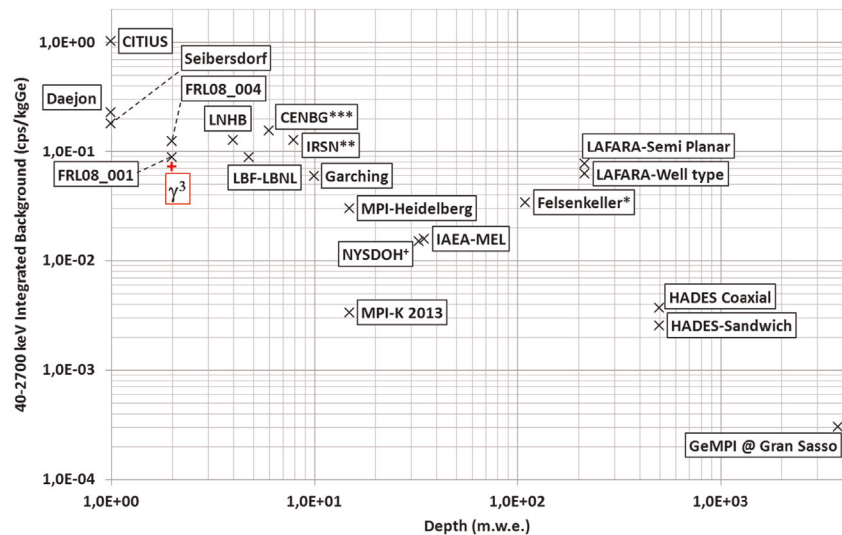


Fig. 6. These spectra illustrate the cosmic veto efficiency for Porthos HPGe. The upper line (in red-dashed) corresponds to a Porthos background measurement of  $1.73 \times 10^5$  s (approximately 2 days) with the cosmic veto deactivated. The lower line (in blue-solid) corresponds to a Porthos background measurement of  $1.22 \times 10^6$  s (approximately 14.1 days) with the cosmic veto activated. During both measurements, nitrogen boiling off from the HPGe Dewar was injected. The blue spectrum is partially detailed in Fig. 8 and analysed in Table 4. (For interpretation of the references to color in this figure legend, the reader is referred to the web version of this article.)





**Fig. 7.** Normalized integral count rate of the  $\gamma^3$  spectrometer, in comparison with other HPGe spectrometers, as a function of depth (in meters of water equivalent (m.w.e.), 1 m.w.e. is equivalent to approximately 2.5–3 m of rock). The normalized integral count rate is calculated in the 40–2700 keV range. \*: Felsenkeller is not using any cosmic veto. \*\*: IRSN is calculating its normalized integral count rate from 30 to 1600 keV. \*\*\*: CENBG is calculating its normalized integral count rate from 30 to 3000 keV. These count rates are taken from Hult et al. (2000), Schwaiger et al. (2002), Hurtado et al. (2006), Povinec et al. (2004), Povinec et al. (2008), Wieslander et al. (2009), Koehler et al. (2009), Ferreux et al. (2009), Haines et al. (2011), de Vismes Ott et al. (2012), Perrot et al. (2012), Hofmann et al. (2013), Thomas et al. (2013), van Beek et al. (2013) and Heusser et al. (2013).

- The magnitudes of  $\gamma$ -lines from  $^{234}\text{Th}$ ,  $^{210}\text{Pb}$  and  $^{235}\text{U}$  were found to be larger than expected. Similar observations have been made by other groups (e.g. Khan et al., 2014). The analysis of the epoxy glue used to fix the carbon entrance window to the aluminum endcap of the HPGe detector revealed its significant contamination by these three radionuclides. The contamination of the epoxy glue is estimated to  $4.8\text{ Bq}(^{234}\text{Th})\text{kg}^{-1}$ .
- The activation  $\gamma$  lines resulting from neutron interaction with either the shielding (Pb activation lines) or the germanium crystal (Ge activation lines) are efficiently reduced by the borated polyethylene layer included in the shielding. The effect is clearly visible for the lines corresponding to long-lived (compared to the anticoincidence time window,  $2\text{ }\mu\text{s}$ )  $^{71\text{m}}\text{Ge}$ ,  $^{73\text{m}}\text{Ge}$  and  $^{75\text{m}}\text{Ge}$ . For these isotopes, the normalized net count rate is similar or lower than the one measured in deeper installations (see Haines et al., 2011). The reduction of these neutron activation  $\gamma$ -lines allows better detection capabilities of radionuclides emitting in the same energy range. The detectability of  $^{234}\text{Th}$  is significantly increased, as its 63.3 keV is not hampered by the  $^{73\text{m}}\text{Ge}$  strong asymmetric activation line at 66.7 keV (see Khan et al., 2014). The detectability of two important markers of nuclear activity in the frame of the CTBTO,  $^{99\text{m}}\text{Tc}$  and  $^{140}\text{Ba}$ , is increased thanks to the borated polyethylene: the  $^{75\text{m}}\text{Ge}$  activation line at 140.5 keV (regarding  $^{99\text{m}}\text{Tc}$ ) and the  $^{206\text{m}}\text{Pb}$  line at 537.4 keV (regarding  $^{140}\text{Ba}$ ) are well reduced.
- The Doppler enlarged peaks (595–650 keV and 690–740 keV) caused by fast neutron interaction with natural isotopes of germanium (respectively  $^{74}\text{Ge}$  and  $^{72}\text{Ge}$ , see Gete et al., 1997) are also reduced due to the PE + B layer, see Fig. 8. This will lead to the increase of detectability for some radionuclides:  $^{134}\text{Cs}$  (604.7 keV),  $^{124,125,126}\text{Sb}$  (respectively 602.7 keV, 600.6 keV and 695.0 keV),  $^{108\text{m}}\text{Ag}$  (614.3 keV),  $^{129\text{m}}\text{Te}$  (695.9 keV),  $^{106}\text{Ru/Rh}$  (621.9 keV) as well as  $^{74}\text{As}$  (595.8 keV). These elements are relevant for the detection and the discrimination of nuclear tests (De Geer, 2001).
- The 511 keV annihilation peak is by two times smaller in the average spectrum of  $\gamma^3$  HPGe detectors than in the two other HPGe detectors. This is because the cosmic veto is more efficiently configured, as 511 keV events are generated by pair production in the germanium crystal from either cosmic muon or high energy  $\gamma$ -rays (generated from cosmic muons in the lead shield). The reduction of the 511 keV annihilation peak is of great interest for enhanced detectability of  $^{85}\text{Kr}$  (514.0 keV) and of  $\beta^+$  emitters, like  $^{22}\text{Na}$  or  $^{26}\text{Al}$ .
- As expected, no Doppler broadened peak around 478 keV (resulting from neutron absorption in boron) is observed, as these photons are absorbed by the 3 cm layer of U2LA lead layer and/or are vetoed (see Fig. 8). This is essential to preserve the detectability of  $^7\text{Be}$  (477.7 keV) in aerosol filters.

**Table 3**  
Comparison of integral background count rates in the  $\gamma^3$  HPGe detectors with the following spectrometers: FRL08\_001 (250 cm<sup>3</sup> n-type coaxial HPGe detector, 59% relative efficiency) and FRL08\_004 (186 cm<sup>3</sup> p-type coaxial HPGe detector, Profile-FX type, 53% relative efficiency). The five HPGe detectors presented hereby are located in the same surface laboratory (2 m.w.e.) and are fitted with cosmic vetoes.

Characteristics		Integrated background count rates (in counts min <sup>-1</sup> )					
		Athos	Porthos	Aramis	Average	FRL08_001	FRL08_004
Energy range (keV)	20–2500	3.9	4.2	3.7	4.0	8.5	7.9
	40–2500	3.7	4.0	3.5	3.8	6.8	7.5
	100–400	1.5	1.6	1.4	1.4	2.2	2.9
	400–1400	1.4	1.5	1.4	1.4	2.6	2.8
	1400–2500	0.3	0.3	0.3	0.3	0.8	0.7
Type		5030P BEGe	5030P BEGe	5030P BEGe		250 cm <sup>3</sup> n-type HPGe	186 cm <sup>3</sup> p-type HPGe
Ge mass (kg)		0.87	0.85	0.86		1.3	0.99



**Table 4**

Comparison of background  $\gamma$ -lines in the  $\gamma^3$  HPGe detectors with the following spectrometers: FRL08-001 (250 cm<sup>3</sup> n-type coaxial HPGe detector, 59% relative efficiency) and FRL08-004 (186 cm<sup>3</sup> p-type coaxial HPGe detector, Profile-FX type, 53% relative efficiency). The five HPGe detectors hereby presented are located in the same surface laboratory (2 m.w.e.) and are equipped with cosmic vetoes. For FRL08-001 and FRL08-004, the number in bracket is the ratio between the count rate in the considered detector and the average count rate in the  $\gamma^3$  spectrometer. Relative peak count rate standard uncertainties are ranging from approximately 10% to 50% depending on peak intensity. Injection of boiling-off nitrogen was active during the  $\gamma^3$  spectrometer background measurement. Background  $\gamma$ -lines are taken from Nunez-Lagos and Virto (1996), Bossew (2005) and Mei et al. (2008).

Elements of background		Count rate (in counts h <sup>-1</sup> )				
Gamma line (in keV)	Origin	Porthos	Athos	Aramis	FRL08_001	FRL08_004
23.4	<sup>71m</sup> Ge	0.42	0.49	0.55	4.7 [9.6]	0.47 [1.0]
46.5	<sup>210</sup> Pb	0.30	0.29	0.26	0.47 [1.6]	0.18 [0.7]
53.2–53.4	<sup>214</sup> Pb, <sup>73m</sup> Ge	0.33	0.24	0.29	1.53 [5.4]	0.56 [2.0]
63.3	<sup>234</sup> Th	0.16	0.32	0.12	Not detected	Not detected
66.7	<sup>73m</sup> Ge	0.60	0.65	0.80	6.99 [10]	4.37 [6.3]
72.9	Pb X-rays	0.44	0.34	0.28	2.06 [5.9]	0.16 [0.4]
75.0	Pb X-rays, <sup>214,212</sup> Pb	1.34	1.38	1.35	5.66 [4.2]	0.83 [0.6]
77.1	<sup>214,212</sup> Pb	1.17	1.06	0.79	3.40 [3.4]	0.76 [0.8]
84.9	Pb X-rays	0.27	0.34	0.52	1.91 [5.0]	0.41 [1.1]
87.6	Pb X-rays	0.50	0.67	0.38	0.82 [1.6]	0.31 [0.6]
92.6	<sup>234</sup> Th	0.62	0.68	0.38	0.22 [0.4]	Not detected
139.7	<sup>75m</sup> Ge	0.78	0.92	0.87	4.37 [5.0]	2.96 [3.4]
143.8	<sup>235</sup> U	0.14	0.19	0.16	Not detected	0.12 [0.7]
159.7	<sup>77m</sup> Ge	0.22	0.13	0.20	0.20 [1.1]	0.84 [4.5]
175.0	<sup>71m</sup> Ge	0.27	0.10	0.17	0.73 [4.0]	0.45 [2.6]
185.7–186.2	<sup>235</sup> U <sup>226</sup> Ra	0.37	0.42	0.33	Not detected	0.43 [1.2]
198.3	<sup>71m</sup> Ge	1.18	1.27	1.09	4.86 [4.2]	2.71 [2.3]
238.6	<sup>212</sup> Pb	0.51	0.39	0.41	0.49 [1.2]	0.55 [1.3]
241.9	<sup>214</sup> Pb	0.69	0.49	0.43	1.85 [3.4]	0.94 [1.7]
277.4	<sup>208</sup> Tl	0.16	0.18	0.18	Not detected	0.81 [4.8]
295.2	<sup>214</sup> Pb	1.42	1.27	0.97	3.75 [2.9]	1.69 [1.4]
351.9	<sup>214</sup> Pb	2.45	2.00	1.85	6.61 [3.1]	3.30 [1.6]
511	Annih.	2.85	2.52	2.44	5.76 [2.2]	5.63 [2.2]
537.4	<sup>206</sup> Pb	0.13	0.09	Not detected	0.16 [2.2]	0.12 [1.6]
569.7	<sup>207</sup> Pb	0.16	0.20	0.26	0.34 [1.6]	0.64 [3.1]
583.2	<sup>208</sup> Tl	0.21	0.19	0.25	0.17 [0.8]	0.33 [1.5]
609.3	<sup>214</sup> Bi	1.78	1.36	1.37	5.41 [3.6]	2.81 [1.9]
768.4	<sup>214</sup> Bi	0.17	0.12	Not detected	0.45 [4.7]	0.12 [1.2]
803.3	<sup>206</sup> Pb	0.21	0.27	0.26	0.38 [1.6]	0.51 [2.1]
911.1	<sup>228</sup> Ac	0.13	0.19	0.12	Not detected	Not detected
934.1	<sup>214</sup> Bi	0.15	0.10	Not detected	0.25 [3.0]	0.09 [1.1]
1120.3	<sup>214</sup> Bi	0.39	0.27	0.27	1.06 [3.4]	0.52 [1.7]
1173.2	<sup>60</sup> Co	0.13	0.10	0.09	Not detected	Not detected
1238.1	<sup>214</sup> Bi	0.15	0.08	0.08	0.50 [4.8]	0.29 [2.8]
1332.5	<sup>60</sup> Co	0.19	0.10	0.08	Not detected	0.10 [0.9]
1460.8	<sup>40</sup> K	0.70	0.78	0.59	0.47 [0.7]	0.25 [0.4]
1764.5	<sup>214</sup> Bi	0.30	0.27	0.20	0.83 [3.2]	0.44 [1.7]

In order to optimize the gas injection in the  $\gamma^3$  spectrometer measurement chamber for the reduction of radon progenies  $\gamma$  lines in its background, a dedicated study was conducted and is presented in the following paragraph.

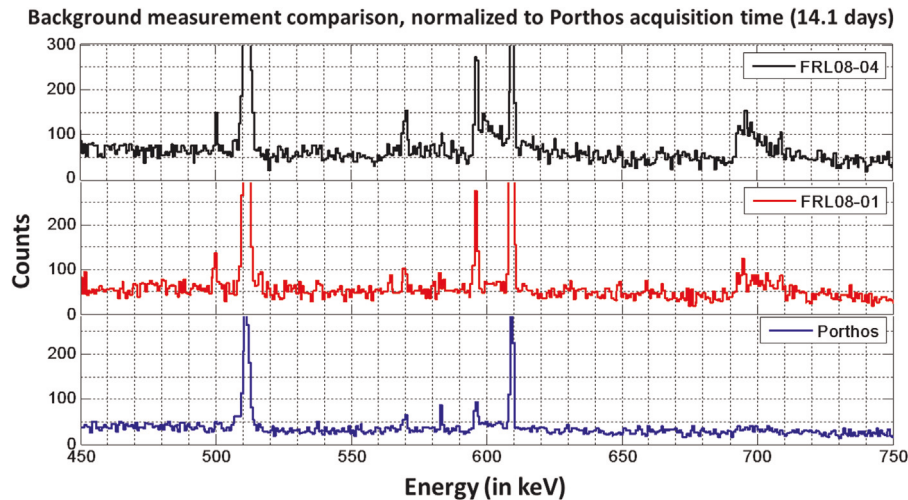
### 3.2. Radon-free nitrogen or air injection efficiency in radon daughter peaks suppression in the background

The average radon level in the laboratory ranges annually between 15 and 30 Bq m<sup>-3</sup>. As explained in paragraph II when detailing the  $\gamma^3$  shielding, two techniques concerning gas injection in the measurement chamber can be implemented: (i) injection of clean nitrogen boiling off from a HPGe dewar, (ii) injection of clean nitrogen from a gas cylinder (for several of nitrogen gas flow rates). The effects of these techniques for radon progenies reduction in  $\gamma^3$  background measurement are compared in Table 5. The most efficient technique is found to be the clean nitrogen injection from a gas cylinder, at a 200 L h<sup>-1</sup> flow rate. The injection of nitrogen boiling off from a single HPGe Dewar is not efficient enough because the resulting flow of nitrogen is too weak to efficiently purge the measurement chamber and to overcome its unavoidable leaks.

### 3.3. Multiple photon coincidence background measurement

The study of this spectrometer coincidence background is relevant as it is also designed for multiple photon coincidence analysis. A  $3.4 \times 10^5$  s (approximately 93 h) list-mode background measurement was performed, while injecting 200 L h<sup>-1</sup> of radon-free nitrogen. During this measurement, each incoming events were time-stamped and their corresponding hitting detector and deposited energy were written in a single file. From these, events arriving in at least two different HPGe detectors within 1  $\mu$ s were characterized as coincident. The integral (from 20–2500 keV) background count rates for each configuration are presented in Table 6. These count rates are found to be much lower than for single measurements, and no peaks were found in the coincidence spectrum, however some clues that a single muon event can induce coincident detection in more than one crystal (resulting especially in 511 keV and Pb X-rays counts) are observed.

On one hand, coincidence measurements exhibit much lower background count rates than single measurements, but on the other hand they suffer from lower detection efficiency. In the case of very low count rate of the sample, it has been proved that coincidence measurements are not helping (Hult, 2007). But when trace amount of specific radionuclides have to be detected in an active sample (background mainly related to Compton effect) or



**Fig. 8.** Comparison of FRL08\_001, FRL08\_004 and Porthos background in the 450–750 keV region, normalized to Porthos background acquisition time. This figure enlightens the reduction of the fast neutron triangular shaped peaks (due to Doppler effect) by the use of a borated polyethylene layer in the spectrometer shielding, as these two peaks (from 595 to 650 keV for  $^{74}\text{Ge}$  and 680 to 740 keV for  $^{72}\text{Ge}$ ) are significantly reduced in the Porthos background compared to FRL08\_001 or FRL08\_004 backgrounds. No peak at 478 keV from  $^7\text{Li}$  is observed in Porthos detector background.

**Table 5**  
Comparison of radon daughters' gamma lines in Porthos background spectrum in several cases: without any injection in the measurement chamber, with the injection of nitrogen boiling off from a single HPGe Dewar (estimated flow:  $65\text{ L h}^{-1}$ ), with the injection of clean nitrogen from a gas cylinder (with several nitrogen flows). The numbers in bracket show the gain in peak reduction when using a gas injection.  $^{212}\text{Pb}$  is a progeny of short-lived  $^{220}\text{Rn}$  radon isotope, which is decaying too quickly to diffuse into the lead shield. The traces of  $^{212}\text{Pb}$  detected in the  $\gamma^3$  background spectrum are due to internal contamination of the detector. Therefore, the 238.6 keV line from  $^{212}\text{Pb}$  is not affected by the gas injection flow.

Elements of background		Porthos (in counts $\text{h}^{-1}$ )			
$\gamma$ -line (in keV)	Origin	Without injection	Nitrogen injection from HPGe Dewar	With clean nitrogen injection from a gas bottle	
				130 $\text{L h}^{-1}$	200 $\text{L h}^{-1}$
77.1	$^{212,214}\text{Pb}$	2.7	1.2 [2.4]	0.77 [3.5]	0.59 [4.6]
238.6	$^{212}\text{Pb}$	0.59	0.51 [0.9]	0.56 [0.9]	0.63 [1.1]
241.9	$^{214}\text{Pb}$	1.6	0.69 [2.3]	0.25 [6.4]	Not detected
295.2	$^{214}\text{Pb}$	3.2	1.4 [2.2]	0.75 [4.3]	0.55 [5.8]
351.9	$^{214}\text{Pb}$	5.6	2.5 [2.3]	1.4 [4.1]	0.72 [7.8]
609.3	$^{214}\text{Bi}$	4.2	1.8 [2.3]	1.0 [4.1]	0.37 [11]
Acquisition time (s)		$2.61 \times 10^5$	$1.22 \times 10^6$	$2.51 \times 10^5$	$3.35 \times 10^5$

**Table 6**  
Multiple photon coincidence backgrounds for several measurement configurations. The ratio is comparing the given number in coincidence with the sum of the integral background count rate from the three (\*) or the two (\*\*) considered detectors. In each case, cosmic veto was active.

Measurement configuration	Athos/Porthos/Aramis	Athos/Aramis	Aramis/Porthos	Porthos/Athos
Integral background count rate (in counts $\text{h}^{-1}$ ) on 20–2500 keV	1.4	7.6	8.8	10.3
Ratio compared to the sum of single background measurement	504*	60**	54**	47**

when one is facing ambiguities in peak attributions, coincidence measurements are of great help (Konki et al., 2012; Tomlin et al., 2008). The usefulness of coincidence measurements will be illustrated in future papers.

4. Conclusion and perspectives

The design of a new versatile ultralow background photon spectrometer installed in a ground level laboratory has been presented. Its cosmic veto configuration and performance are detailed, the normalized integral count rate of a 14.1 day background measurement is compared with published performance of other setups,  $\gamma^3$  background characteristic  $\gamma$ -lines are listed and compared with the ones from two other spectrometers installed in the laboratory.

At shallow depth, it has been demonstrated that the cosmic veto is essential for the background reduction. In the present case, it reduces the normalized integral background count rate by a factor of 11 in the 20–2500 keV energy range. The use of borated polyethylene has proven to be efficient for the reduction of neutron activation  $\gamma$ -lines in the spectrometer background measurements and increases the detectability of several fission products of interest. The injection of a  $200\text{ L h}^{-1}$  flux of radon-free gas in the measurement chamber is efficient enough to suppress the radon progenies  $\gamma$ -lines from the detectors background.

It is common practice to compare low level gamma ray spectrometer performances in terms of normalized (to Ge crystal mass) count rate. This allows taking into account the detection efficiency of the systems (detection efficiency is considered to be roughly proportional to crystal mass). In the present case with the double/triple BEGe crystal configuration, the detection efficiency is highly increased by the detection solid angle (by a factor of 2–3 compared to a single crystal configuration) whereas the total Ge mass remains limited ( $2$  or  $3 \times 0.85\text{ kg}$ ). Comparable detection efficiency with a single crystal configuration is not possible for low energy  $\gamma$ -rays ( $< 100\text{ keV}$ ) and would require an unrealistic massive crystal for higher energy ones ( $> 100\text{ keV}$ ). The energy resolution of such a system would also be greatly hampered by the size of the crystal. Another advantage of the multiple crystals configuration (combined with a digital acquisition system) lies in the independent

photon detection scheme which allows simple additive or coincidence/anti-coincidence measurements. The  $\gamma^3$  setup combines both (i) one of the lowest background among surface level laboratories (ii) and a high detection efficiency. This will allow to push forward the radionuclide detection capabilities and/or to improve significantly the sample throughput.

Future development of the  $\gamma^3$  setup will include the injection of de-radonized air in the measurement chamber (for an expected integral background count rate reduction of approximately 10%), optimization of the cosmic veto detection efficiency and mitigation of the residual  $^{40}\text{K}$  contamination.

## Acknowledgments

The authors are very thankful to X. Blanchard for his preparative work to the realization of  $\gamma^3$ , and to G. Heusser for his very precious advices. This work was partially financially supported by the French Ministry of Defense, DGA, Office for Advanced Research and Innovation.

## References

- Bossey, P., 2005. A very long-term HPGe-background gamma spectrum. *Appl. Radiat. Isot.* 62, 635–644.
- Burnett, J.L., Davies, A.V., 2012. Development of a cosmic veto gamma-spectrometer. *J. Radioanal. Nucl. Chem.* 292, 1007–1010.
- Burnett, J.L., Davies, A.V., 2014. Cosmic veto gamma-spectrometry for comprehensive Nuclear-Test-Ban Treaty samples. *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. A* 747, 37–40.
- Cagniant, A., Le Petit, G., Gross, P., Douysset, G., Richard-Bressand, H., Fontaine, J.-P., 2013. Improvements of low-level radon detection sensitivity by state-of-the-art coincidence setup. *Appl. Radiat. Isot.* 87, 48–52.
- CTBTO, 1996. The Comprehensive Nuclear Test Ban Treaty. C.T.B.T.O. Vienna, Austria.
- De Geer, L.-E., 2001. Comprehensive Nuclear-Test-Ban Treaty: relevant radionuclides. *Kerntechnik* 66, 113–120.
- de Vismes Ott, A., Aubry, S., Mekhlouche, D., Cagnat, X., Gurriaran, R., 2012. Simple cost-effective anti-cosmic device, ICRM-LLRMT'12, Jeju, Korea.
- Ferreux, L., Moutard, G., Branger, T., 2009. Measurement of natural radionuclides in phosphogypsum using an anti-cosmic gamma-ray spectrometer. *Appl. Radiat. Isot.* 67, 957–960.
- Formaggio, J.A., Martoff, C.J., 2004. Backgrounds to sensitive experiments underground. *Annu. Rev. Part. Nucl. Sci.* 54, 361–412.
- Gete, E., Measday, D.F., Moftah, B.A., Saliba, M.A., Stocki, T.J., 1997. Neutron-induced peaks in Ge detectors from evaporation neutrons. *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. A* 212–219.
- Haines, D.K., Semkow, T.M., Khan, A.J., Hoffman, M., Meyer, S.T., Beach, S.E., 2011. Muon and neutron-induced background in gamma-ray spectrometry. *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. A* 652, 326–329.
- Heusser, G., 1993. Cosmic ray-induced background in Ge-spectrometry. *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. B* 83, 223–228.
- Heusser, G., 1995. Low-radioactivity background techniques. *Annu. Rev. Part. Nucl. Sci.* 45, 543–590.
- Heusser, G., Weber, M., Denz, T., Hakenmueller, J., Hofacker, R., Lackner, R., Lindner, M., Maneschg, W., Reisfelder, M., Simgen, H., Schreiner, J., Stolzenburg, D., Strecker, H., Westermann, J., 2013. GIOVE, a shallow laboratory ge-spectrometer with 100  $\mu\text{mBq/kg}$  sensitivity. In: *Proceedings of the AIP Conference*, 1549.
- Hofmann, M., Mannel, T., Sivers, M.V., 2013. Low-background gamma-ray spectrometry in the garching underground laboratory, low radioactivity techniques. In: *Proceedings of the IV International Workshop in Low Radioactivity Techniques*. Assergi, Italy.
- Hult, M., 2007. Low-level gamma-ray spectrometry using Ge-detectors. *Metrologia* 44, S87–S94.
- Hult, M., Martinez Canet, M.J., Köhler, M., das Neves, J., Johnston, P.N., 2000. Recent developments in ultra low-level gamma-ray spectrometry at IRMM. *Appl. Radiat. Isot.* 53, 225–229.
- Hurtado, S., Garcia-Leon, M., Garcia-Tenorio, R., 2006. Optimized background reduction in low-level gamma-ray spectrometry at a surface laboratory. *Appl. Radiat. Isot.* 64, 1006–1012.
- Jutier, C., Douysset, G., 2012. Performance assessment by Monte Carlo simulations of a prospective assembly of up to three HPGe detectors designed for superior detection efficiency and sensitivity. *Appl. Radiat. Isot.* 70, 1969–1973.
- Khan, A.J., Semkow, T.M., Beach, S.E., Haines, D.K., Bradt, C.J., Bari, A., Syed, U.-F., Torres, M., Marrantino, J., Kitto, M.E., Menia, T., Fielman, E., 2014. Application of low-background gamma-ray spectrometry to monitor radioactivity in the environment and food. *Appl. Radiat. Isot.* 90, 251–257.
- Koehler, M., Degering, D., Laubenstein, M., Quirin, P., Lampert, M.-O., Hult, M., Arnold, D., Neumaier, S., Reyss, J.L., 2009. A new low-level gamma-ray spectrometry system for environmental radioactivity at the underground laboratory Felsenkeller. *Appl. Radiat. Isot.* 67, 736–740.
- Konki, J., Greenlees, P.T., Jakobsson, U., Jones, P., Julin, R., Juutinen, S., Ketelhut, S., Hauschild, K., Kontro, R.L., A.-P., Leppanen, Lopez-Martens, A., Mattila, A., Nieminen, P., Nyman, M., Peräjärvi, K., Peura, P., Rahkila, P., Ruotsalainen, P., Saren, J., Scholey, C., Sorri, J., Toivonen, H., Turunen, J., Uusitalo, J., 2012. Comparison of gamma-ray coincidence and low-background gamma-ray singles spectrometry. *Appl. Radiat. Isot.* 70, 392–396.
- Le Petit, G., Douysset, G., Ducros, G., Gross, P., Achim, P., Monfort, M., Raymond, P., Pontillon, Y., Jutier, C., Blanchard, X., Taffary, T., Moulin, C., 2014. Analysis of radionuclide releases from the Fukushima Dai-Ichi Nuclear Power Plant Accident Part I. *Pure Appl. Geophys.* 171, 629–644.
- Mei, D.-M., Elliott, S.R., Hime, A., Gehman, V., Kazkaz, K., 2008. Neutron inelastic scattering processes as a background for double- $\beta$  decay experiments. *Phys. Rev. C* 77, 054614.
- Nunez-Lagos, R., Virto, A., 1996. Shielding and background reduction. *Appl. Radiat. Isot.* 47, 1011–1021.
- Perrot, F., Hubert, P., Marquet, C., Pravikoff, M.S., Bourquin, P., Chiron, H., Guernion, P.-Y., Nachab, A., 2012. Evidence of  $^{131}\text{I}$  and  $^{134,137}\text{Cs}$  activities in Bordeaux, France due to the Fukushima nuclear accident. *J. Environ. Radioact.* 114, 61–65.
- Pointurier, F., Laurec, J., Blanchard, X., Adam, A., 1996. Cosmic-ray induced background reduction by means of an anticoincidence shield. *Appl. Radiat. Isot.* 47, 1043–1048.
- Povinec, P.P., Betti, M., Jull, A.J.T., Vojtyla, P., 2008. New isotope technologies in environmental physics. *Acta Phys. Slovaca* 58, 1–154.
- Povinec, P.P., Comanducci, J.-F., Levy-Palomo, I., 2004. IAEA-MEL's underground counting laboratory in Monaco—background characteristics of HPGe detectors with anti-cosmic shielding. *Appl. Radiat. Isot.* 61, 85–93.
- Schroettner, T., Schwaiger, M., Kindl, P., 2004. Optimization of an active anti cosmic veto shielding. *Appl. Radiat. Isot.* 61, 133–138.
- Schwaiger, M., Steger, F., Schroettner, T., Schmitzer, C., 2002. A ultra low level laboratory for nuclear test ban measurements. *Appl. Radiat. Isot.* 56, 375–378.
- Thomas, K.J., Norman, E.B., Smith, A.R., Chan, Y.D., 2013. Installation of a muon veto for low background gamma spectroscopy at the LBNL low-background facility. *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. A* 47–53.
- Tomlin, B.E., Zeisler, R., Lindstrom, R.M., 2008. Gamma-gamma coincidence spectrometer for instrumental neutron-activation analysis. *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. A* 243–249, 243–249.
- van Beek, P., Souhaut, M., Lansard, B., Bourquin, M., Reyss, J.L., von Ballmoos, P., Jean, P., 2013. LAFARA: a new underground laboratory in the French Pyrénées for ultra low-level gamma-ray spectrometry. *J. Environ. Radioact.* 152–158.
- Wieslander, J.S.E., Hult, M., Gasparro, J., Marissens, G., Misiaszek, M., Preusse, W., 2009. The Sandwich spectrometer for ultra-low gamma-ray spectrometry. *Appl. Radiat. Isot.* 67, 731–735.